

# Zwei-Photonen-Polymerisation zur Erzeugung mikrostrukturierter 3D-Freiformtargets für die Laser-Ionen-Beschleunigung

**Two-photon polymerization for generation of micro-structured targets for laser-ion acceleration**

Zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation von Torsten Abel aus Ottweiler

Tag der Einreichung: 15.05.2018, Tag der Prüfung: 04.07.2018

Darmstadt — D 17

1. Gutachten: Prof. Dr. Markus Roth
2. Gutachten: Prof. Dr. Thomas Walther



TECHNISCHE  
UNIVERSITÄT  
DARMSTADT

Fachbereich Physik  
Institut für Kernphysik  
Laser- und Plasmaphysik



Graduate School of  
Energy Science  
and Engineering

Zwei-Photonen-Polymerisation zur Erzeugung mikrostrukturierter 3D-Freiformtargets für die Laser-Ionen-Beschleunigung

Two-photon polymerization for generation of micro-structured targets for laser-ion acceleration

Genehmigte Dissertation von Torsten Abel aus Ottweiler

1. Gutachten: Prof. Dr. Markus Roth

2. Gutachten: Prof. Dr. Thomas Walther

Tag der Einreichung: 15.05.2018

Tag der Prüfung: 04.07.2018

Darmstadt — D 17

Version: Abel Juli 2018

Bitte zitieren Sie dieses Dokument als:

URN: urn:nbn:de:tuda-tuprints-76772

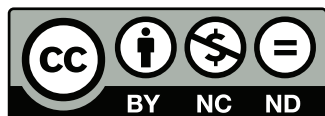
URL: <http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/7677>

Dieses Dokument wird bereitgestellt von tuprints,

E-Publishing-Service der TU Darmstadt

<http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de>

[tuprints@ulb.tu-darmstadt.de](mailto:tuprints@ulb.tu-darmstadt.de)



Die Veröffentlichung steht unter folgender Creative Commons Lizenz:

Namensnennung – Keine kommerzielle Nutzung – Keine Bearbeitung 4.0 International

<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>

---

Für meine Familie

---





---

# Kurzzusammenfassung

Die vorliegende wissenschaftliche Arbeit befasst sich mit der Methode der Zwei-Photonen-Polymerisation zur Herstellung von Materialproben für die Laser-Ionen-Beschleunigung. Diese Materialproben, welche auch als Targets bezeichnet werden, werden in Experimenten zur Untersuchung von Licht-Materie-Wechselwirkung bei höchster Laserleistung eingesetzt, bei denen insbesondere die Beschleunigung von Teilchen im Mittelpunkt steht. Schwerpunkt dieser Arbeit ist die Implementierung eines ganzheitlichen Verfahrens zur Produktion von dreidimensionalen Freiformtargets. Ziel dabei war es, sowohl den experimentellen Aufbau, als auch eine geeignete Prozesskette für den gesamten Ablauf der Targetherstellung zu etablieren und zu optimieren.

Die Stärke der Zwei-Photonen-Polymerisation liegt darin, dass mit ihr sehr hoch aufgelöste, dreidimensionale Freiformgeometrien gefertigt werden können. Die bisher in der Targetherstellung vielfach verwendeten klassisch mechanischen Herstellungsverfahren (wie zum Beispiel Drehen und Fräsen) sind für solch kleine Freiformstrukturen, in der Größenordnung einiger  $\mu\text{m}^3$ , weniger geeignet.

Die hohe Auflösung der Zwei-Photonen-Polymerisation geht einher mit einer verhältnismäßig langen Produktionszeit, weshalb sich dieses Verfahren besonders für kleine, massenlimitierte Targets eignet. Um diese feinen Mikrostrukturen handhaben zu können, wird eine größere Haltestruktur benötigt. Im Rahmen dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass die integrierte Herstellung von Haltestrukturen und hochaufgelösten dreidimensionalen Targets auf Waferbasis möglich ist. Dabei wird eine maskenbasierte UV-Belichtung zur Herstellung der großflächigen Haltestrukturen benutzt, während die mikrostrukturierten dreidimensionalen Freiformtargets durch Zwei-Photonen-Polymerisation belichtet werden.

Es fanden zwei unterschiedliche Kombinationen (Proben) aus Substratmaterial, Photolack und Opferschicht als Ausgangsmaterial Anwendung. Mit beiden Proben konnte nachgewiesen werden, dass es möglich ist, Zwei-Photonen-Polymerisation mit konventioneller UV-Lithographie zu kombinieren. Um die Funktionsweise des Gesamtprozesses zu demonstrieren, wurden unter anderem rückseitenmodulierte hemispherische Targets produziert. Eine solche Targetgeometrie erlaubt zum Beispiel die experimentelle Untersuchung der ballistischen Fokussierung eines laserbeschleunigten Teilchenstrahls.

Bei der Verwendung eines dieser so hergestellten Targets in einem Experiment zur Laser-Ionen-Beschleunigung am Lasersystem PHELIX der GSI im Frühjahr 2018 konnte gezeigt werden, dass eine Teilchenbeschleunigung mit derartigen Targets möglich ist.

---



---

# Abstract

The present work deals with the method of two-photon polymerization for the preparation of material samples for the laser-ion acceleration. These material samples, which are also called targets, are used in experiments to study light-matter interaction at highest laser power, which focuses in particular on the acceleration of particles. The focus of this work is the implementation of a holistic process for the production of three-dimensional free-form targets. The aim is to establish and optimize both an experimental setup and a suitable process chain for the entire process of target creation.

The strength of the two-photon polymerization lies in the fact that it can be used to produce three-dimensional free-form structures with a high resolution. The class of micro-machining methods, which currently are widely used in the target preparation, like milling and lathing, are less suitable for such small free-form geometries in the order of few  $\mu\text{m}^3$ .

The high resolution of the two-photon polymerization goes along with a relatively long production time, which is why this method is particularly suitable for small, mass-limited targets. To handle these small structures a holding-frame is necessary. In the context of this work it could be shown, that the integrated production of holding-frames and high resolution three-dimensional targets on a wafer basis is possible. Doing this, a mask-based UV exposure is used to produce the large-area holding-frame, while the microstructured three-dimensional free-form targets are exposed by two-photon polymerization.

Two different combinations (samples) of substrate material, photoresist and sacrificial layer as starting material were used. With both samples it could be shown, that it is possible to combine two-photon polymerization with conventional UV lithography. In order to demonstrate the functionality of the overall process, backside modulated hemispheric targets were produced. Such a target geometry allows, for example, the experimental investigation of the ballistic focusing of a laser-accelerated particle beam.

When using one of these targets in a laser ion acceleration experiment on the GSI PHELIX laser in spring 2018, it was shown that particle acceleration with such targets is possible.

---



---

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen der Laser-Ionen-Beschleunigung</b>	<b>3</b>
2.1	Plasma . . . . .	3
2.1.1	Debye-Abschirmung . . . . .	3
2.1.2	Plasmafrequenz . . . . .	4
2.1.3	Elektromagnetische Wellen im Plasma . . . . .	5
2.2	Elektronenheizung . . . . .	5
2.2.1	Inverse Bremsstrahlung . . . . .	5
2.2.2	Resonanzabsorption . . . . .	6
2.2.3	Brunel-Heizung . . . . .	6
2.2.4	Ponderomotorische Kraft . . . . .	7
2.2.5	$\vec{j} \times \vec{B}$ -Heizung . . . . .	7
2.3	Target Normal Sheath Acceleration – TNSA . . . . .	8
2.4	Targetdesign . . . . .	9
2.4.1	Strukturierte Targets . . . . .	9
2.4.2	Targetgeometrie . . . . .	10
<b>3</b>	<b>Grundlagen der Zwei-Photonen-Polymerisation</b>	<b>13</b>
3.1	Nichtlineare Optik . . . . .	13
3.1.1	Einführung in die Nichtlineare Optik . . . . .	13
3.1.2	Paraxiale Näherung . . . . .	15
3.1.3	Brechungsindex . . . . .	18
3.2	Laserpulse . . . . .	18
3.2.1	Modenkopplung . . . . .	19
3.2.2	Kerr-Effekt . . . . .	25
3.2.3	Dispersion . . . . .	27
3.2.4	Optische Kompression . . . . .	29
3.2.5	Messung ultrakurzer Laserpulse – Intensitäts-Autokorrelation . . . . .	31
3.3	Grundlagen der Zwei-Photonen-Polymerisation . . . . .	33
3.3.1	Zwei-Photonen-Absorption . . . . .	33
3.3.2	Wirkungsquerschnitt der Zwei-Photonen-Absorption . . . . .	36
3.3.3	Voxelgröße . . . . .	37
3.4	Grundlagen der Photolithographie . . . . .	39
3.4.1	Präparation der Probe . . . . .	39
3.4.2	Belichtung . . . . .	41
3.4.3	Vernetzungsreaktionen von Negativlack . . . . .	43
<b>4</b>	<b>Aufbau und Charakterisierung einer Anlage für die Zwei-Photonen-Polymerisation</b>	<b>47</b>
4.1	Lasersystem und Strahlführung . . . . .	47
4.2	Fokussierung und Positionierung . . . . .	53
4.3	Verwendete Software . . . . .	57

---

<b>5 Erzeugung von Strukturen mittels Zwei-Photonen-Polymerisation</b>	<b>63</b>
5.1 Präparation der Probe . . . . .	63
5.2 UV-Belichtung . . . . .	66
5.3 Zwei-Photonen-Polymerisation . . . . .	69
5.4 Entwickeln der belichteten Strukturen und Ablösen vom Substrat . . . . .	71
<b>6 Anwendungsbeispiel eines Zwei-Photonen-Polymerisations-Targets für die Laser-Ionen-Beschleunigung</b>	<b>73</b>
6.1 Targetdesign und Simulation . . . . .	73
6.2 Herstellung und Charakterisierung . . . . .	75
6.3 Verwendung im Experiment . . . . .	78
<b>7 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>81</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>I</b>
<b>Publikationen und Konferenzen</b>	<b>III</b>
<b>Danksagung</b>	<b>V</b>
<b>Lebenslauf</b>	<b>VII</b>

---

---

# 1 Einleitung

Das bis heute aktuelle und wichtige Forschungsgebiet der Laser-Plasma-Wechselwirkung konnte über die letzten Jahrzehnte dank der enormen Entwicklung im Bereich der Lasertechnik erschlossen werden. Seit der Demonstration des ersten Lasers 1960 durch T. Maiman [1] haben sich die durch Laser erreichbaren Intensitäten um ein Vielfaches gesteigert. Während die Laser der ersten Tage kaum Lichtleistung produziert haben, ist es heute durch Kurzpuls-Lasersysteme möglich, Lichtleistungen im Petawatt-Bereich zu erreichen.

Das Komprimieren der Laserenergie in kurze Pulse (Unterkapitel 3.2) durch Güteschaltung [2] und Modenkopplung [3], vor allem aber Techniken zur Verstärkung solcher kurzer Laserpulse, wie zum Beispiel die „Verstärkung zeitlich gestreckter Pulse“ (engl. *chirped pulse amplification*, **CPA**), die von D. Strickland und G. Mourou [4] im Jahr 1985 erstmals eingeführt wurde, haben dabei für große Fortschritte gesorgt. Durch das Fokussieren der Laserpulse bis nahe an das Beugungslimit können heutzutage Intensitäten von mehr als  $10^{21} \text{ W/cm}^2$  [5, 6, 7] erreicht werden. Je nach Probenmaterial und Pulsdauer kann ab einer Intensität von ca.  $10^9 \text{ W/cm}^2$  ein Plasma an der Targetoberfläche gezündet werden. Freie Elektronen werden im elektromagnetischen Feld des Laserlichtes beschleunigt und ionisieren durch Stöße weitere Atome. Der dadurch erreichte Plasmazustand der Materie (Unterkapitel 2.1), der auch als sogenannter vierter Aggregatzustand bezeichnet wird, ist Gegenstand aktueller Forschung. Ein Schwerpunkt bei der Betrachtung der Laser-Materie-Wechselwirkung ist die Laser-Ionen-Beschleunigung. Dieser Mechanismus beruht auf einer Ladungstrennung der negativ geladenen Elektronen und der positiv geladenen Ionen durch die Einwirkung des elektro-magnetischen Feldes des Lasers auf die freien Ladungsträger im Plasma (Unterkapitel 2.2). Durch die Separation entstehen elektrische Feldstärken, die mehrere  $\text{MV}/\mu\text{m}$  erreichen können. Bei der lasergetriebenen Teilchenbeschleunigung wird eben dieses starke elektrische Feld zur Beschleunigung von Elektronen und Ionen genutzt.

Abhängig von den zur Verfügung stehenden Laserintensitäten und der Targetbeschaffenheit dominieren unterschiedliche Beschleunigungsmechanismen. Die Funktionsweise des für die vorliegende Arbeit relevanten Mechanismus der *Target Normal Sheath Acceleration*, kurz TNSA, wird in Unterkapitel 2.3 erläutert. Charakteristisch für diesen Beschleunigungsprozess ist das Austreten der Teilchen orthogonal zur Oberfläche der Targetrückseite.

Für die experimentelle Untersuchung der lasergetriebenen Teilchenbeschleunigung spielen nicht nur die Laserparameter eine Rolle. Auch die Materialprobe, das sogenannte Target, auf welches der fokussierte Laser trifft, ist von größter Bedeutung. Wie Unterkapitel 2.4 der vorliegenden Arbeit zeigt, ist dabei sowohl die geometrische Form, als auch die Oberflächenbeschaffenheit von Relevanz. So kann zum Beispiel die dem Laser zugewandte Seite des Targets strukturiert werden [8, 9], um die Absorption des Lichtes zu erhöhen. Durch eine verbesserte Absorption kann die Konversionseffizienz von Laserleistung in Teilchenenergie erhöht werden. Aber auch die Oberflächengüte der vom Laser abgewandten Seite des Targets hat einen wichtigen Einfluss, welcher von der Selektion der beschleunigten Ionen bis hin zur Beeinflussung der elektrischen Felder während der Beschleunigung reicht [10, 11]. Durch eine gezielte Manipulation der Felder kann unter anderem die räumliche Dichteverteilung im Teilchenstrahl beeinflusst und charakterisiert werden [11, 12, 13, 14, 15].

Für viele Anwendungen ist eine einfache geometrische Targetform, wie zum Beispiel eine flache Folie, zweckdienlich [16, 17]. Es gibt jedoch eine Vielzahl an Experimenten, die ein komplexes, dreidimensionales Design erfordern [18]. Ähnlich wie bei der Strukturierung wirkt sich auch die makroskopische Geometrie auf die elektromagnetische Feldverteilung aus.

Die Forderung nach zunehmend komplexeren Targetgeometrien, gepaart mit dem Bau immer schneller repetierender Lasersysteme, erfordert eine ebenso stetige Entwicklung der Prozesse bei der Target-

---

herstellung selbst. Die in dieser Arbeit vorgestellte Methode aus dem Bereich der nichtlinearen Optik (Unterkapitel 3.1), die Zwei-Photonen-Polymerisation, birgt das Potential, auch zukünftig die Anforderungen an komplexe dreidimensionale Freiformtargets erfüllen zu können.

Die Zwei-Photonen-Polymerisation (Unterkapitel 3.3) lässt sich in den Bereich der Photolithographie einordnen. Das Ausgangsmaterial, die Probe, besteht wie bei den klassischen Lithographieverfahren (Unterkapitel 3.4) aus einer Schicht Photolack auf einem Substrat. Im Vergleich zur klassischen UV-Lithographie, bei der Photolack durch eine Maske mit Licht aus dem ultravioletten Regime (um 400 nm) polymerisiert wird, basiert die Zwei-Photonen-Polymerisation auf einem nichtlinear-optischen Effekt, bei dem erst die gleichzeitige Absorption von zwei Photonen aus dem infraroten Spektralbereich (um 800 nm) zu einer Polymerisation führt. Um für diese, 1931 durch M. Göppert-Mayer beschriebene [19], Zwei-Photonen-Absorption eine signifikante Wahrscheinlichkeit zu erreichen, ist eine hohe Photonendichte notwendig. Solche Photonendichten werden im Fokus eines entsprechend gewählten Laserstrahls erreicht. Da nur ein kleines Volumen im Fokus polymerisiert, entstehen kleine Volumenpixel, kurz Voxel. Durch Abrastern der gewünschten Volumengeometrie im Photolack, kann so, Voxel für Voxel, eine dreidimensionale Freiform erzeugt werden. Während die meisten Systeme für die Zwei-Photonen-Polymerisation minimale Strukturgrößen von einigen 100 nm erreichen, werden in dafür spezialisierten Experimenten Auflösungen im zweistelligen Nanometerbereich erreicht [20, 21]. Durch die Überlagerung zweier Laserstrahlen gelang es Z. Gan im Jahr 2013 eine Voxelgröße von nur 9 nm herzustellen und nachzuweisen [22]. Um solche höchsten Auflösungen zu erreichen, sind spezielle Laser- und Photolacksysteme notwendig.

Dieses hochauflösende Verfahren eignet sich besonders, um kleine, massenlimitierte und mikrostrukturierte Freiformgeometrien herzustellen. Erste Tests mit kommerziellen Systemen für die Targetfertigung hat L. J. Jiang im Jahr 2016 [23] durchgeführt. Eine Abgrenzung dieser Methode zur Targetproduktion gegen bereits etablierte Targetherstellungsverfahren wie Zerspanen und Abformen findet in Unterkapitel 2.4 statt. Der für die Zwei-Photonen-Polymerisation entwickelte Aufbau im Detektor und Targetlabor der TU Darmstadt wurde für eine Auflösung im Bereich von 200 nm entworfen und wird in Kapitel 4 beschrieben.

Um die geringe Größe solcher Geometrien handhaben zu können, wird eine makroskopische Haltestruktur benötigt. Die vorliegende Arbeit zeigt, dass es möglich ist, solche Haltestrukturen mit klassischer UV-Lithographie zu belichten und diese für die Targetherstellung mit der Zwei-Photonen-Polymerisation zu kombinieren.

Durch die Verknüpfung der hochauflösenden Zwei-Photonen-Polymerisation einerseits und der massentauglichen Herstellung von 2,5D-Strukturen durch UV-Lithographie andererseits wird es möglich, komplexe Freiformtargets auch in höherer Stückzahl herzustellen und einzusetzen. Die gesamte benötigte Prozesskette, um ein solches Target herzustellen, ist in Kapitel 5 in allen Einzelschritten anhand eines Beispiels dargestellt. Die Parameter der Beispielstruktur, ein hemisphärisches Target mit Rückseitenmodulation, wurden mithilfe entsprechender Simulationen (Unterkapitel 6.1) bestimmt.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, dass die Zwei-Photonen-Polymerisation mit klassischer UV-Lithographie kombiniert werden kann. Auf diese Weise konnten dreidimensionale Zwei-Photonen-Polymerisations-Targets mit Mikromodulation hergestellt werden (Unterkapitel 6.2), welche sich in UV-belichteten Haltestrukturen befinden. Erste Experimente (Unterkapitel 6.3) haben gezeigt, dass mit derart erzeugten Targets Ionen beschleunigt werden können.



---

## 2 Grundlagen der Laser-Ionen-Beschleunigung

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit Plasmen im Allgemeinen, der Laser-Ionen-Beschleunigung sowie dem Einfluss des Targetdesigns auf den generierten Teilchenstrahl.

Im ersten Unterkapitel 2.1 werden allgemeine Kenngrößen zur Charakterisierung eines Plasmas eingeführt. Ein für Plasmen typisches Verhalten ist die Kollektivität der Teilchenbewegung innerhalb des Plasmas. Daraus resultieren wichtige Plasmacharakteristika, wie die Debye-Abschirmung und die Plasmafrequenz. Der letzte Teil dieses Unterkapitels befasst sich mit dem Verhalten elektromagnetischer Wellen im Plasma.

Das zweite Unterkapitel 2.2 behandelt verschiedene Elektronenheizprozesse. Die Reihenfolge richtet sich dabei nach der benötigten Laserintensität. Nacheinander werden dementsprechend inverse Bremsstrahlung, Resonanzabsorption, Brunel-Heizung und  $\vec{j} \times \vec{B}$ -Heizung erklärt.

Wie auf Basis des *Target Normal Sheath Acceleration*-Mechanismus Teilchen beschleunigt werden können, legt das dritte Unterkapitel 2.3 dar.

Das vierte und letzte Unterkapitel 2.4 zeigt auf, wie mikrostrukturierte Targets zur Charakterisierung von Plasmen bei der Laser-Ionen-Beschleunigung genutzt werden können und welchen Einfluss makroskopische Targeteigenschaften haben.

---

### 2.1 Plasma

Als Plasma wird voll- oder auch nur teilweise ionisierte, quasineutrale Materie bezeichnet. Quasineutral bedeutet in diesem Zusammenhang, dass das Plasma annähernd gleich viele positive und negative Ladungen enthält. In dichten Plasmen kommt es zu Teilchen-Teilchen-Stößen. Je weniger dicht das Plasma wird, desto seltener kommt es zu Stößen. In einem kollisionslosen Plasma interagieren die Ladungen vorwiegend durch elektromagnetische Kräfte über lange Distanzen miteinander. Es kommt so zu einem für Plasmen typischen kollektiven Verhalten. Plasma wird häufig als vierter Aggregatzustand bezeichnet.

---

#### 2.1.1 Debye-Abschirmung

Eine aus dem kollektiven Verhalten der geladenen Teilchen im Plasma resultierende Eigenschaft des Plasmas ist seine Fähigkeit, Ladungen sehr effektiv abzuschirmen. Von einer positiven Testladung  $+Q$  werden die Elektronen angezogen, während die Ionen abgestoßen werden. Dies führt zu einer Raumladung, die das elektrische Feld der Testladung schwächt. Weniger energetische Teilchen werden stärker von ihrer ursprünglichen Bahn abgelenkt als schnelle, energetische Teilchen. Dadurch verkleinert sich der gestörte Bereich und die Abschirmung ist effektiver. Der Abschirmprozess ist demzufolge nicht statisch, sondern skaliert mit der Energie der Elektronen und Ionen.

Das Lösen der Poisson-Gleichung für die Punktladung  $Q$  unter der Randbedingung der Abschirmung und vom Coulombpotential ausgehend, führt zum sogenannten *Debye-Hückel-Potential* [24]

$$\Phi_{DE}(r) = \frac{Q}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r} \exp[-r/\lambda_D]. \quad (2.1)$$

Hierbei gibt  $r$  den Abstand zur Punktladung an.  $\varepsilon_0$  ist die elektrische Feldkonstante und  $\lambda_D$  die Debyelänge. Die Debyelänge gibt den Abstand zur Testladung an, ab dem deren elektrisches Potential auf das  $1/e$ -fache abgefallen ist. Die Debyelänge für Elektronen bzw. Ionen einzeln betrachtet ist gegeben durch

$$\lambda_{De}^2 = \frac{\varepsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}, \quad \lambda_{Di}^2 = \frac{\varepsilon_0 k_B T_i}{n_i e^2}. \quad (2.2)$$

Die Variablen  $T_e$ ,  $T_i$ ,  $n_e$  und  $n_i$  stehen dabei für die Temperaturen und die Dichten der Elektronen bzw. Ionen.

Die Abschirmlänge  $\lambda_D$  für ein Plasma aus Elektronen und einer Ionenspezies der Ladung  $Z$ , die oft als *linearisierte Debyelänge* bezeichnet wird, ist gegeben durch

$$\frac{1}{\lambda_D^2} = \frac{1}{\lambda_{De}^2} + \frac{1}{\lambda_{Di}^2}. \quad (2.3)$$

und kann durch Einsetzen von Gleichung (2.2) angegeben werden als

$$\lambda_D^2 = \left( \frac{e^2 n_e}{\varepsilon_0 k_B T_e} + \frac{e^2 Z n_i}{\varepsilon_0 k_B T_i} \right)^{-1}. \quad (2.4)$$

Gleichung (2.3) zeigt, dass der Abschirmprozess von Elektronen und Ionen vergleichbar ist mit der Parallelschaltung von Widerständen. Die Gesamtabschirmung ist geringer als die Einzelwirkung von Elektronen bzw. Ionen.

Durch die gute Abschirmung ist das Plasma auf Längenskalen größer der Debyelänge quasineutral. Auf kleineren Bereichen gilt dies jedoch nicht. Dies hat zur Folge, dass eine Teilchenwolke, bestehend aus Elektronen und Ionen, sich nur dann plasmatypisch verhalten kann, wenn seine Gesamtausdehnung einigen Debyelängen entspricht.

Um die Anzahl der für die Quasineutralität nötigen Elektronen  $N_D$  zu quantifizieren, wird die sogenannte *Debyekugel* betrachtet. Dies ist eine Kugel mit dem Radius einer Debyelänge. Für den daraus resultierenden Plasmamaparameter gilt

$$N_D = \frac{4}{3} \pi n_e \lambda_D^3. \quad (2.5)$$

---

## 2.1.2 Plasmafrequenz

---

Ein weiterer für ein Plasma charakteristischer Wert ist die *Plasmafrequenz*.

Ein von außen auf ein Plasma wirkendes elektromagnetisches oder elektrostatisches Feld verursacht eine Störung im Plasma. Diese soll durch das Potential  $\Phi_{\text{Störung}}$  beschrieben werden. Ist die Störung klein im Vergleich zu der thermischen Energie der Elektronen im Plasma, gilt also  $|e\Phi_{\text{Störung}}| \ll k_B T$ , dann ändert sich die Energie der Elektronen nicht wesentlich und ihre Geschwindigkeit entspricht nahezu unverändert der thermischen Geschwindigkeit  $v_e \approx (k_B T_e / m_e)^{1/2}$ . Um in eine Gleichgewichtslage zurückzukehren, muss ein Elektron typischerweise eine Strecke zurücklegen, die kleiner als die Debyelänge ist. Die Reaktionszeit der Elektronen auf diese Störung kann daher abgeschätzt werden zu

$$\tau \approx \frac{\lambda_D}{v_e}. \quad (2.6)$$

Hierbei ist  $v_e \approx (k_B T_e / m_e)^{1/2}$  die thermische Geschwindigkeit, mit der die Elektronen zurück in eine Gleichgewichtslage streben, um die neutrale Ladungsverteilung wieder herzustellen. Das Reziproke von

Gleichung (2.6) wird als *Plasmafrequenz* bezeichnet und gibt die Frequenz der um die Ruhelage oszillierenden Elektronen an. Es gilt [24]:

$$\omega_p = \frac{v_e}{\lambda_D} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e}}. \quad (2.7)$$

Dabei bezeichnet  $e$  die Elementarladung,  $n_e$  die Elektronendichte,  $m_e$  die Elektronenmasse und  $\epsilon_0$  die elektrische Feldkonstante.

---

### 2.1.3 Elektromagnetische Wellen im Plasma

---

Trifft ein Laser auf ein Plasma, so kann die Dispersionsrelation

$$\omega_L^2 = \omega_p^2 + c^2 k^2 \quad (2.8)$$

aufgestellt werden [25, 26]. Hat der Laser eine Frequenz, die größer als die Plasmafrequenz ist, gilt also  $\omega_L > \omega_p$ , ergibt sich aus Gleichung (2.8) ein reeller Wellenvektor  $k$  und das Plasma ist für den Laser transparent. Man spricht in diesem Fall von einem *unterdichten Plasma*. Bei einem Plasma mit *kritischer Dichte* entspricht die Laserfrequenz exakt der Plasmafrequenz  $\omega_L = \omega_p$ . In diesem Fall muss der Wellenvektor Null sein. Der Laser kann nun nicht mehr in das Plasma eindringen. Für die kritische Dichte folgt aus (2.7):

$$n_k = \frac{\epsilon_0 m_e \omega_L^2}{e^2}. \quad (2.9)$$

Ist die Laserfrequenz zu klein, gibt es keinen reellen Wellenvektor  $k$  mehr, der die Gleichung (2.8) erfüllt. Ein imaginärer Wellenvektor  $k$  bedeutet jedoch, dass die elektromagnetische Welle nicht mehr durch das Plasma propagieren kann. Durch die räumliche Abhängigkeit der Welle von  $\exp[ikx]$  wird diese durch einen imaginären Wellenvektor exponentiell gedämpft [26]. Man spricht hierbei von einem *überkritischen Plasma*. Die Strecke, die der Laser noch in das Plasma eindringt bevor seine Amplitude auf das  $1/e$ -fache gesunken ist, wird als *Skintiefe*  $\delta_s$  bezeichnet. Für die Skintiefe gilt:

$$\delta_s = |k|^{-1} = \frac{c}{\sqrt{\omega_p^2 - \omega_L^2}}. \quad (2.10)$$

---

## 2.2 Elektronenheizung

---

Die Fertigungstechniken für Targets, sowie die in Experimenten zur vorliegenden Arbeit gefertigten Targets, sollen ihre Anwendung im Bereich der Laser-Ionen-Beschleunigung finden. Wenngleich auch andere Beschleunigungsmechanismen existieren und Targets auch zu diesem Zweck herstellbar sind, bezieht sich diese Arbeit auf die Beschleunigung mit ultrakurzen Laserpulsen mit Pulslängen unter einer Pikosekunde. Aufgrund ihrer Massenträgheit kann die Beschleunigung der Ionen in diesem Zeitraum vernachlässigt werden. Die Ionen können damit als stationär angesehen werden. Im vorliegenden Unterkapitel werden deshalb lediglich lasergetriebene Elektronenheizungsprozesse vorgestellt.

---

### 2.2.1 Inverse Bremsstrahlung

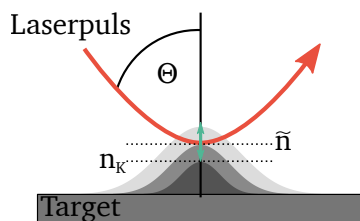
---

In einem unterkritischen Plasma kann ein freies Elektron während eines Stoßes mit einem Ion oder einem anderen Elektron ein Photon absorbieren. Dieser Prozess findet bei relativ geringen Laserintensitäten von  $I > 10^{15} \text{ W/cm}^2$  statt. Dieser zur Bremsstrahlung komplementäre Prozess wird als *inverse Bremsstrahlung*

bezeichnet. Durch den Stoß wird die Energie- und Impulserhaltung während der Absorption des Photons durch das freie Elektron nicht verletzt.

### 2.2.2 Resonanzabsorption

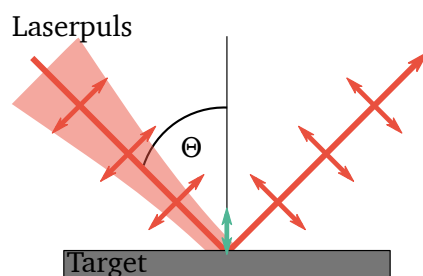
Trifft ein Laser mit einer Intensität von  $I > 10^{15} \text{ W/cm}^2$  und p-polarisiertem Licht in einem Winkel  $\theta > 0$  auf ein Plasma mit Dichtegradient, dringt er in dieses ein Stück weit ein [27]. Durch die kontinuierliche Brechzahländerung wird der Laser immer weiter abgelenkt, bis er parallel zur Targetoberfläche verläuft und das Plasma wieder verlässt. Der parallele Verlauf wird am Ort der Brechzahl  $\tilde{n} = n_k \cos^2(\theta)$  erreicht. Dies ist in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt. In blau ist der p-polarisierte Anteil des Laserpulses angedeutet. Dieser kann als evaneszente Welle die Barriere von  $\tilde{n}$  bis  $n_k$  durchtunneln und bei  $n_k$  Elektronen zu resonanten Schwingungen anregen, da sich dort die Laserfrequenz mit der Plasmafrequenz deckt.



**Abbildung 2.1:** Das p-polarisierte Laserlicht dringt in das Plasma mit Dichtegradient ein. Im Bereich von  $\tilde{n}$  wird es so weit abgelenkt, dass es das Plasma wieder verlässt. Der p-polarisierte Anteil des Laserpulses (blau) regt als evaneszente Welle die Elektronen bis zur kritischen Dichte  $n_k$  an.

### 2.2.3 Brunel-Heizung

Im Jahr 1987 veröffentlichte F. Brunel ein Papier, in dem er die „Not-So-Resonant, Resonant Absorption“ beschrieb [28]. Heute ist der von ihm entdeckte Prozess gemeinhin als *Brunel-Heizung* bekannt. Voraussetzung für diesen Mechanismus ist ein Plasma mit steilem Dichtegradient mit einer Skalenlänge in der Größenordnung der Amplitude der Elektronenoszillation und ein Laserfeld mit einer Intensität von  $I > 10^{16} \text{ W/cm}^2$  [28]. Das Lichtfeld muss eine Komponente des elektrischen Feldes senkrecht zur Plasmaoberfläche aufweisen. Dies ist der Fall, wenn ein p-polarisierter Laser unter einem Winkel zur Plasmaoberfläche von  $\theta \neq 0^\circ$  einfällt. Durch die p-Polarisation und den Einfallswinkel  $\theta$  entsteht bei der Reflexion an der Targetoberfläche eine Komponente des elektrischen Feldes, welche normal zur Targetoberfläche steht. Dies ist in Abbildung 2.2 dargestellt.



**Abbildung 2.2:** Bei der Brunel-Heizung trifft ein p-polarisierter Laserpuls auf ein Plasma mit steilem Dichtegradient. Durch die senkrecht ins Target weisende Schwingungskomponente (blau) des elektrischen Feldes werden Elektronen beschleunigt.

Bei der Reflexion entsteht die größtmögliche Schwingungskomponente in Targetnormalenrichtung. An dieser Stelle werden die Elektronen von der ersten Halbschwingung des Laserfeldes aus dem Target heraus beschleunigt. Die zweite Halbschwingung beschleunigt die Elektronen ausgehend von dieser Lage der maximalen Auslenkung zurück in Richtung Targetoberfläche, respektive kritische Dichte. Da die Elektronen so den Punkt der kritischen Dichte überschreiten, der Laser aber nur bis zur Skintiefe eindringen kann, wirkt nun nur noch eine sehr geringe Rückstellkraft der evaneszent in das überdichtete Medium eingedrungenen Welle auf sie. Die Elektronen bewegen sich nun vom Laser unbeeinflusst durch

das Targetmaterial. Bei s-Polarisation sowie bei einem Einfallswinkel von  $\theta = 0^\circ$  gibt es keine Komponente des elektrischen Feldes in Targetnormalenrichtung bei der Reflexion, sodass keine Brunel-Heizung stattfindet.

Weitere Details zur Brunel-Heizung können zum Beispiel dem Ursprungswerk von F. Brunel [28] oder, in aufgearbeiteter Form, der Arbeit von A. Tebartz [29] entnommen werden.

---

## 2.2.4 Ponderomotorische Kraft

---

Die *ponderomotorische Kraft* wirkt auf ein freies Elektron, wenn sich dieses in einem elektromagnetischen Wechselfeld mit Ortsgradient aufhält. Wird das Elektron durch die erste Teilwelle des Feldes in eine Region geringerer Amplitude bewegt, so erfährt es eine entsprechend geringere Rückstellkraft. Es kommt zu einem Energieübertrag auf das Elektron, wodurch es sich sukzessive in Richtung der geringsten Feldamplitude bewegt. Die so entstehende zeitlich gemittelte Kraft wird als ponderomotorische Kraft bezeichnet.

Im nichtrelativistischen Fall, in dem das Magnetfeld vernachlässigbar ist, kann die Bewegungsgleichung des Elektrons angegeben werden als [30]

$$m_e \ddot{\vec{x}} = q \vec{E}(x) \cos(\omega t). \quad (2.11)$$

Hierbei kann für die Ladung  $q$  die Elementarladung des Elektrons  $-e$  eingesetzt werden. Wird die ortsabhängige Änderung des elektrischen Feldes unter störungstheoretischen Gesichtspunkten betrachtet, kann das Feld als Taylorentwicklung dargestellt werden

$$\vec{E}(x) \approx E(x_0) + x_1(t) \frac{d}{dx} E(x_0). \quad (2.12)$$

Eine Näherung mittels Taylorreihenentwicklung ist hier zulässig, da die Ortsveränderlichkeit des elektrischen Feldes, gemessen in Skalenlängen der Elektronenbewegung, sehr gering ausfällt. Die Variable  $x_0$  gibt den Ausgangsort des Elektrons an. Wird die oben genannte Relation in die Bewegungsgleichung eingesetzt und diese gelöst, führt dies zu

$$F_p = m \langle \ddot{x} \rangle = -\frac{q^2}{4m\omega^2} \frac{d}{dx} E^2(x_0). \quad (2.13)$$

Hier wurde bereits über die schnellen Schwingungen gemittelt [24]. Die ponderomotorische Kraft drückt die Elektronen in Gebiete mit niedriger Feldamplitude  $E$  bzw. niedriger Intensität. Gleichung (2.13) gilt in dieser Form nur für linearpolarierte Laser mit nichtrelativistischen Intensitäten.

Ist die Laserintensität  $I > 10^{18} \text{ W/cm}^2$ , kann der Einfluss des magnetischen Feldes nicht länger vernachlässigt werden. In diesem Fall wirkt die ponderomotorische Kraft schon für eine ebene Welle entlang der Ausbreitungsrichtung und nicht nur senkrecht dazu.

---

## 2.2.5 $\vec{j} \times \vec{B}$ -Heizung

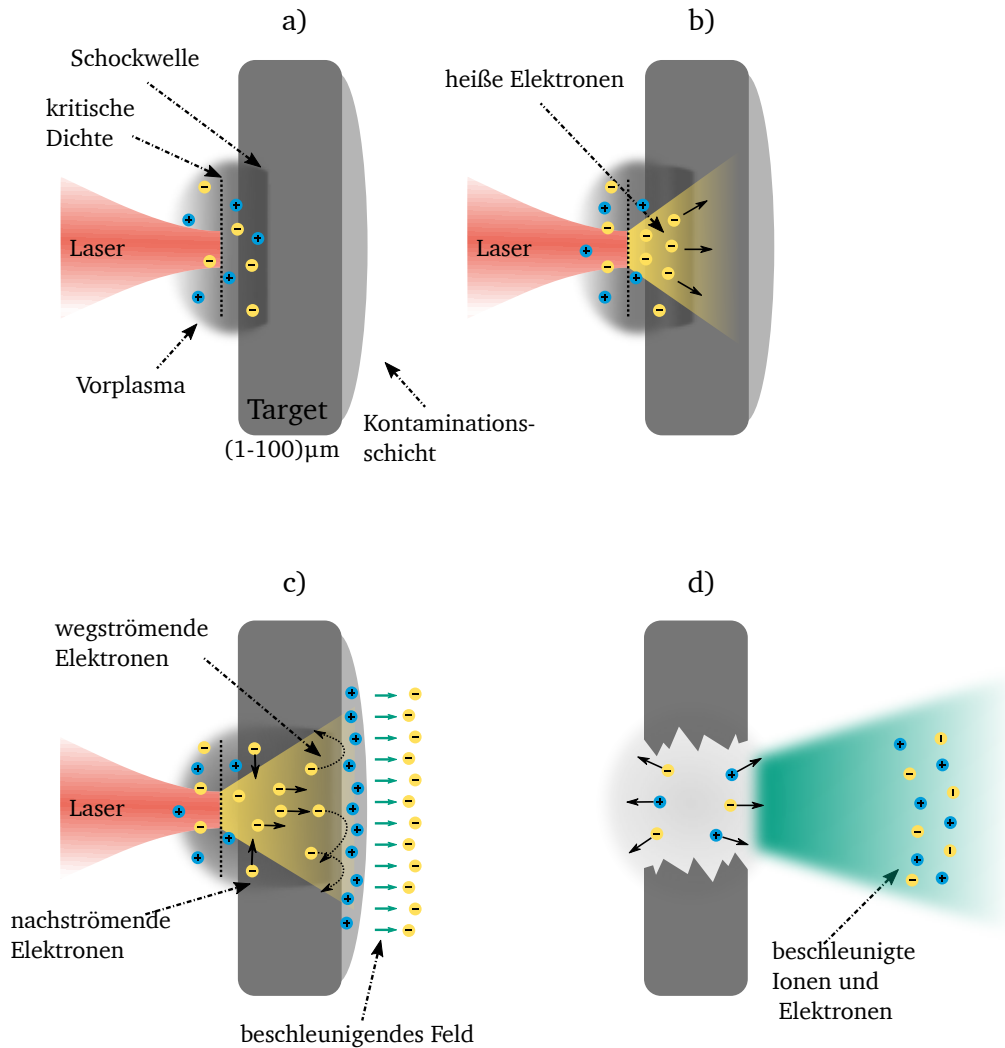
---

Die  $\vec{j} \times \vec{B}$ -Heizung entsteht durch die Dominanz der magnetischen Komponente der Lorentzkraft bei Laserintensitäten jenseits der  $10^{18} \text{ W/cm}^2$  [31]. Dieser Heizprozess ist verwandt mit der ponderomotorischen Kraft, da sich diese aus dem Mittelwert der  $\vec{j} \times \vec{B}$ -Kraft ergibt. Es tritt jedoch zusätzlich ein Term doppelter Frequenz  $2\omega$  auf. Da die  $\vec{j} \times \vec{B}$ -Kraft zu großen Teilen entlang der Laserausbreitungsrichtung, also senkrecht zur Grenzfläche der kritischen Dichte wirkt, tritt sie auch bei s-polarisiertem Licht und senkrechtem Einfall auf. Die Grundprinzipien des Mechanismus sind ansonsten gleich denen der Brunel-Heizung.

## 2.3 Target Normal Sheath Acceleration – TNSA

Im folgenden Unterkapitel wird der Mechanismus der *Target Normal Sheath Acceleration*, kurz **TNSA**, zusammengefasst eingeführt. Eine detaillierte Beschreibung dieses im Jahr 2000 von mehreren Gruppen zeitgleich [32, 33, 34, 35] entdeckten Prozesses kann zum Beispiel in der Arbeit „Optimization and control of laser-accelerated proton beams“ von M. Schollmeier [36] gefunden werden.

Abbildung 2.3 zeigt schematisch den Ablauf der *Target Normal Sheath Acceleration*.



**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung der *Target Normal Sheath Acceleration*. Eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Schritte kann dem Text entnommen werden.

Trifft ein Laser mit einer Fokusintensität größer als  $10^{18} \text{ W/cm}^2$  auf ein Target einer Dicke von  $(1-100) \mu\text{m}$ , so kommt es durch den endlichen Kontrast des Lasers schon vor dem Hauptpuls zu einer Ionisation der Targetoberfläche. In diesem Zusammenhang beschreibt der Kontrast das Verhältnis des Intensitätsmaximums eines Laserpulses zur Intensität zu einem früheren Zeitpunkt.

Die Ionisation der Targetoberfläche äußert sich durch ein *Vorplasma* (Abbildung 2.3 a)). Durch den Abdrucksdruck des expandierenden Plasmas wird eine Schockwelle ausgelöst, die durch das Target, zu dessen Rückseite läuft. Trifft der Hauptteil des Laserpulses auf das Vorplasma, propagiert dieser durch die unterdichte Region, bis er den Bereich der kritischen Dichte erreicht. Ein Großteil der Laserleistung wird am Ort der kritischen Dichte vom Plasma reflektiert, der Rest wechselwirkt mit den freien Elektronen aus dem Vorplasma und beschleunigt diese (Abbildung 2.3 b)).

---

Je nach Laserintensität, Pulslänge und Polarisierung finden unterschiedliche Laser-Materie-Wechselwirkungen statt. Die Mechanismen der Wechselwirkungen zwischen Laser und Elektronen wurden bereits in Unterkapitel 2.2 eingeführt. Die im Vergleich zu den Elektronen schweren Ionen sind zu träge, um dem schnellen Feld des Lasers zu folgen. Die auf relativistische Geschwindigkeit geheizten Elektronen propagieren durch das Target und sammeln sich auf dessen Rückseite (Abbildung 2.3 c)). Es kommt zu einer Ladungsseparation, die ein Feld in der Größenordnung von TV/m erzeugt. Die durch die Ladungsseparation induzierte Feldstärke ist damit in der Größenordnung des Laserfeldes.

Die Ankopplung der Ionen an die Elektronen ist vorwiegend elektrostatisch. Elektronen niedriger Energie können vom Feld der Ionen zurück in das Targetmaterial gezogen werden. Andererseits werden auch ständig Elektronen erneut beschleunigt und es kommt zur Rezirkulation. Schnelle, energetische Elektronen verlassen das Target und tragen nicht länger zum Beschleunigungsprozess bei.

Detaillierte theoretische Modelle zu TNSA sind unter anderem in den Arbeiten von C. Perego, M. Passoni und P. Mora [37, 38, 39] zu finden und sollen im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter diskutiert werden.

---

## 2.4 Targetdesign

---

Bei der Erzeugung lasergetriebener Teilchenstrahlen spielt neben dem Laser und seinen Parametern das Target eine große Rolle. Abgesehen von verschiedenen Metallen mit hoher Ladungszahl, wie zum Beispiel Gold und Wolfram, finden auch Kunststoffe, Kristalle, kryogene Feststoffe, Gas- und Flüssigkeitsjets Anwendung. Durch eine Strukturierung der Oberfläche auf der Vorderseite des Targets kann die Interaktion zwischen Laser und Target beeinflusst werden. Weiter hat eine strukturierte Rückseite Auswirkungen auf den beschleunigten Teilchenstrahl. Verschiedene Möglichkeiten zur Strukturierung, sowie Beispiele zu deren bisherigen Anwendungen, werden im ersten Abschnitt dieses Unterkapitels gezeigt. Der zweite Abschnitt befasst sich mit großskaligen Änderungen der Targetform, die sich zum Beispiel auf die Divergenz des Teilchenstrahls auswirken. Einen guten Überblick über lasergetriebene Ionenquellen und deren Anwendungen zeigt H. Daido [40]. Dieses Unterkapitel bezieht sich vorwiegend auf Experimente, bei denen der Beschleunigungsprozess der *Target Normal Sheath Acceleration* (siehe Unterkapitel 2.3) untersucht wird. Nichtsdestotrotz stellt dieses Unterkapitel keine vollständige Übersicht über alle verfügbaren Targetarten und -geometrien dar.

---

### 2.4.1 Strukturierte Targets

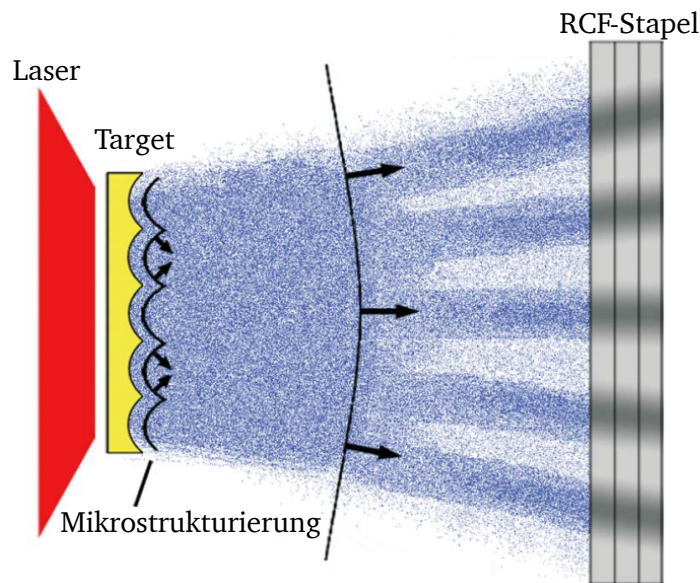
---

Bei strukturierten Targets können zwei Hauptarten unterschieden werden – die Strukturierung der Vorderseite und die der Rückseite des Targets. Rückseite bezeichnet hier die vom Laser abgewandte Seite. Bei der Verwendung von einheitlichen, flachen Folien als Target, werden neben dem Targetmaterial hauptsächlich Kohlenwasserstoffverunreinigungen, die sich auf der Rückseite befinden, beschleunigt. Durch eine Beschichtung der Rückseite kann dafür Sorge getragen werden, eine bestimmte Ionenspezies zu beschleunigen. L. Giuffrida [11] konnte zeigen, dass ein Target mit einer mit Nanospheren bedeckten Rückseite im Vergleich zu einer unbeschichteten, dielektrischen Folie eine homogenere räumliche Verteilung der beschleunigten Ionen zur Folge hat. Die Nanospherenstruktur auf der Targetoberfläche wurde hierbei durch eine einlagige Schicht dichtgepackter, kommerziell erhältlicher Polystyren-Kugeln mit einem Durchmesser von 400 nm erzeugt [41].

Durch das Abbilden einer bekannten Struktur der Targetrückseite können mithilfe der durch die Struktur hervorgerufenen Modulation der Dichteverteilung im erzeugten Teilchenstrahl sehr genaue Rückschlüsse auf die Quellgröße, die Divergenz und somit die Emittanz gezogen werden [42]. Der experimentelle Nachweis einer derartigen Abbildung wurde bereits mehrfach erbracht [12, 13, 14, 15]. Das Prinzip einer solchen Übertragung von Targetstrukturen auf einen Detektor ist in Abbildung 2.4 schematisch dargestellt.

So wie die Rückseite eines Targets manipuliert werden kann, so ist dies auch mit der dem Laser zugewandten Seite möglich. Während eine Monoschicht aus Nanospheren auf der Rückseite für eine Ho-





**Abbildung 2.4:** Prinzipdarstellung der Übertragung einer Mikrostruktur auf den Detektor (hier: radiochromatische Filme (RCF) in Stapelkonfiguration). Bild auf Basis von [15].

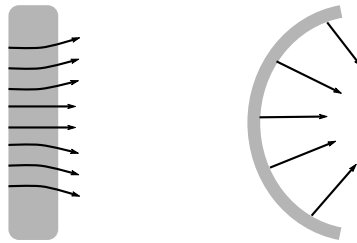
mogenisierung des beschleunigten Teilchenstrahls sorgt, erhöht eine solche Schicht auf der Vorderseite des Targets die Lichtabsorption. D. Margarone [10] hat außerdem gezeigt, dass durch die Verwendung von Nanospheren als Targetvorderseite die Beschleunigungseigenschaften einzelner Targets derselben Art zueinander konstanter werden. Das heißt, die Ergebnisse von Experiment zu Experiment werden vergleichbarer. Er konnte auch nachweisen, dass die definierte Schicht auf der Vorderseite von dielektrischen Folien einer Filamentierung entgegen wirkt und so einen Teilchenstrahl mit konstantem Divergenzwinkel erzeugen kann. O. Klimov [43] hat sowohl in Simulationen als auch im Experiment gezeigt, dass durch dieses Verfahren eine Steigerung der Konversionseffizienz der Laserleistung in heiße Elektronen herbeigeführt werden kann. Durch die erhöhte Dichte und die höhere Temperatur der Elektronen wird gleichermaßen die Ionenenergie gesteigert. Diese und viele andere Simulationen und Experimente haben gezeigt, dass durch verschiedene Strukturen die Laserabsorption gesteigert werden kann [9, 44, 45]. Zur Strukturierung können unterschiedliche Formen und Erzeugungsmethoden angewandt werden: von partiellem mechanischem Abtrag des eigentlichen Targetmaterials durch Fräsen, Schneiden oder Drehen [46], über die Oberflächenbearbeitung mit einem Laser [47, 8] oder durch Ätzen bis hin zum Auftragen eines zweiten Materials in Form von Nanopartikeln [48] und Nanospheren [41, 49], Mikrodrähten [9, 50], Schäumen [51] oder Bakterien [52]. Die Anwendungsmöglichkeiten und Limitierungen der einzelnen Strukturierungsverfahren sind dabei sehr unterschiedlich. Die kleinstmögliche Strukturgröße bei zerspannenden Techniken ist zum Beispiel durch die Werkzeuggröße begrenzt und liegen typischerweise über einem Mikrometer [53]. Sowohl beim Auftragen eines zweiten Materials, als auch bei Ablations- und Ätzprozessen sind Strukturgrößen von einigen hundert Nanometern erreichbar, jedoch entstehen meist stochastisch verteilte Strukturen. Mit kaum einem der genannten Verfahren ist die Strukturierung innerhalb einer konkaven Geometrie mit einem Krümmungsradius von wenigen hundert Mikrometern deterministisch umsetzbar.

## 2.4.2 Targetgeometrie

Im vorangehenden Abschnitt 2.4.1 wurde dargestellt, wie eine Mikrostruktur auf der Oberfläche eines Targets die Teilchenbeschleunigung beeinflusst. Aber auch die gesamte Targetgeometrie hat einen erheblichen Einfluss auf den Prozess der TNSA.



Für das Studium der verschiedenen Beschleunigungsprozesse werden oft flache Folientargets verwendet. Durch Variation der Foliendicke und des Folienmaterials können Targets dieser Art an das Experiment angepasst werden. F. Wagner führte 2014 ein Experiment durch, bei dem er zeigen konnte, dass bei gleichen Targets abhängig von der Dicke unterschiedliche Teilchenbeschleunigungs-Mechanismen auftreten [54]. Soll der generierte Teilchenstrahl für weitere Experimente verwendet werden, ist eine Beeinflussung der Divergenz des Teilchenstrahls wünschenswert. Um die Divergenz zu beeinflussen, werden dreidimensionale Targetformen benötigt. So kann zum Beispiel durch Krümmen einer Folie entlang einer Achse ein ballistisches Fokussieren der beschleunigten Teilchen entlang einer Achse erreicht werden [55]. Dies ist in Abbildung 2.5 schematisch dargestellt.



**Abbildung 2.5:** Vergleich der Teilchenstrahlgeometrie zwischen flachen und gekrümmten Folien. Der Teilchenstrahl, der von einer flachen Folie bei TSA ausgeht, ist divergent. Eine entlang einer Achse gekrümmte Folie führt zu einer fokussierenden Wirkung in dieser Dimension.

Um den Teilchenstrahl in zwei Raumrichtungen zu beeinflussen, ist ein dreidimensional geformtes Target notwendig [56, 57]. Im Jahr 2001 zeigten Simulationen von S. Wilks [58], dass hemispherische Targetgeometrien bei der Laser-Ionen-Beschleunigung zu einem fokussierten Teilchenstrahl führen. P. Patel nutzte diesen Effekt 2003, um mit den beschleunigten Protonen einen Feststoff isochor zu heizen. Im Jahr 2011 konnte D. T. Offermann [59] zum ersten Mal mithilfe eines hemispherischen Diamanttargets einen fokussierten Kohlenstoff-Ionenstrahl erzeugen. Einen Simulations-Vergleich zwischen flachen Folientargets und hemispherischen Targets zeigt zum Beispiel B. Qiao [60].

Dreidimensional geformte Targets nehmen durch ihre Geometrie Einfluss auf die Verteilung der Elektronen während der Beschleunigung [61]. So kommt es nicht nur zu einer Einflussnahme auf die Divergenz des Teilchenstrahls, sondern auch die Effizienz des Prozesses kann beeinflusst werden [18]. Auch die Gesamtgröße des verwendeten Targets wirkt sich auf die Experimente aus. Verschiedene Simulationen und Experimente haben gezeigt, dass sowohl bei Folientargets [62, 63] als auch bei dreidimensionalen Targetgeometrien [64, 65, 66] durch eine Massenlimitierung der Targets die Effizienz des Beschleunigungsmechanismus gesteigert werden kann.

Bei kleinen massenlimitierten Targets stellt die Halterung und Handhabung eine zusätzliche Herausforderung dar, da auch Haltestrukturen einen Einfluss auf das Experiment haben können. Einen Aufbau, bei dem mithilfe einer Paul-Falle ein schwebendes, halterloses Target bereitgestellt werden kann, hat T. Ostermayr im Jahr 2018 vorgestellt [67]. Dieses Verfahren ist jedoch äußerst aufwändig und eignet sich zum Beispiel nicht für Targetgeometrien, bei denen die Orientierung relevant ist.

Dreidimensionale Targets werden häufig durch Abformprozesse hergestellt. Mit der Zwei-Photonen-Polymerisation ist es sowohl möglich, Rohlinge für solche Abformungen herzustellen, als auch Targets selbst durch direkte Fertigung. Durch die, in dieser Arbeit vorgestellte, integrative Herstellung der Targetgeometrie in einer Haltestruktur wird gleichfalls die Handhabung komplexer Strukturen erleichtert.



---

## 3 Grundlagen der Zwei-Photonen-Polymerisation

Der physikalische Kernprozess der vorliegenden Arbeit, die Zwei-Photonen-Polymerisation, ist ein nichtlinear-optischer Prozess dritter Ordnung. Um diesen einzuführen, wird zunächst im Unterkapitel 3.1 eine allgemeine Einführung in die nichtlineare Optik gegeben. Dabei wird die Wechselwirkung zwischen intensiver Laserstrahlung und Materie erläutert.

Das zweite Unterkapitel befasst sich mit eben dieser intensiven Laserstrahlung. Begonnen wird mit der Erzeugung ultrakurzer Lichtpulse durch Modenkopplung (3.2.1), wobei sowohl die aktive als auch passive Modenkopplung betrachtet werden. Es folgt der Kerr-Effekt (3.2.2), der zum einen beim Modenkoppeln eine wichtige Rolle spielt, zum anderen aber auch die Grundlage des darauf folgenden Abschnitts 3.2.3, in dem die Dispersion betrachtet wird, darstellt. Die beiden letzten Themenkomplexe des zweiten Unterkapitels befassen sich mit der optischen Kompression (3.2.4) und der Messung der zeitlichen Ausdehnung (3.2.5) so generierter ultrakurzer Laserpulse.

Die zentralen Prozesse der Zwei-Photonen-Polymerisation sind Inhalt des dritten Unterkapitels, beginnend mit der ihr zugrunde liegenden Wechselwirkung der Zwei-Photonen-Absorption (3.3) über den dazugehörigen Wechselwirkungsquerschnitt (3.3.2) bis hin zur räumlichen Ausdehnung dieses Prozesses im Medium, der sogenannten Voxelgröße (3.3.3).

Das letzte Unterkapitel befasst sich mit der klassischen UV-Lithographie (3.4). Hier wird neben dem Verfahren der klassischen Photolithographie, wie es auch in den Experimenten zur vorliegenden Arbeit Anwendung fand, die Präparation der Proben und das Verhalten von Photolack ausgeführt. Die in diesem Unterkapitel beschriebenen Lacke und Proben stellen auch das Ausgangsmaterial der Zwei-Photonen-Polymerisation dar.

---

### 3.1 Nichtlineare Optik

---

Das folgende Unterkapitel befasst sich mit einer allgemeinen Einführung in die nichtlineare Optik. Von der Polarisation eines Medium ausgehend wird erläutert, wie sich intensive Lichtfelder auf Medien auswirken und wie es in Folge dessen zu Frequenzkonversionsprozessen kommt. Weiterhin wird die paraxiale Näherung und die Fokussierung von Gaußstrahlen dargestellt, sowie das Verhalten des Brechungsindex unter Einwirkung intensiver Lichtfelder diskutiert.

---

#### 3.1.1 Einführung in die Nichtlineare Optik

---

Bei der Betrachtung von Lichtfeldern, deren Feldstärke viel geringer ist als die elektrischen Felder im Atom bzw. Molekül, kann die in dielektrischen Medien induzierte Polarisation  $\vec{P}(\vec{r}, t)$  am Ort  $\vec{r}$  zum Zeitpunkt  $t$  in guter Näherung als linear angesehen werden. Diese Polarisation ist proportional zur elektrischen Feldstärke  $\vec{E}(\vec{r}, t)$ , wobei sich die Proportionalitätskonstante aus dem Produkt der elektrischen Feldkonstante  $\epsilon_0$  und der linearen Suszeptibilität  $\chi^{(1)}$  zusammen setzt [68]:

$$\vec{P}^{(1)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}(\vec{r}, t). \quad (3.1)$$

Im Regime intensiverer Lichtfelder kommt es zu einer größeren Auslenkung der Elektronen im Medium, so dass die lineare Näherung der induzierten Polarisation nicht länger valide ist. Man spricht in diesem Fall von nichtlinearer Optik und stellt die Polarisation  $\vec{P}(\vec{r}, t)$  als Reihenentwicklung

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} \vec{E}(\vec{r}, t) + \chi^{(2)} (\vec{E}(\vec{r}, t))^2 + \chi^{(3)} (\vec{E}(\vec{r}, t))^3 + \dots] \quad (3.2)$$

dar. Hierbei ist  $\chi^{(n)}$  die Suszeptibilität  $n$ -ter Ordnung. Diese wird durch einen komplexen Tensor  $(n+1)$ -ter Stufe verkörpert und stellt eine frequenz- und richtungsabhängige Materialkonstante dar, deren Betrag mit wachsendem  $n$  schnell abnimmt. Die Gesamtpolarisation kann geschrieben werden als Summe aller Polarisationen  $n$ -ter Ordnung

$$\vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(n)} (\vec{E}(\vec{r}, t))^n \quad (3.3)$$

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_{n=1}^{\infty} \vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t). \quad (3.4)$$

Daraus ergibt sich für den nichtlinearen Anteil der Polarisation

$$\vec{P}^{NL}(\vec{r}, t) = \sum_{n=2}^{\infty} \vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t). \quad (3.5)$$

Aufgrund ihrer Symmetrie weisen zentrosymmetrische Materialien keine Suszeptibilitäten gerader Ordnung auf. Zentrosymmetrisch sind isotrope Medien wie Flüssigkeiten, Gase, amorphe Festkörper wie zum Beispiel Glas und viele Kristalle. Solche Stoffe zeichnen sich durch eine Invarianz gegenüber der Inversion der Ortskoordinate aus [69], das heißt sie sind invariant gegenüber einer Punktspiegelung an einem Inversionszentrum. Für das elektrische Feld  $\vec{E}$  und die Polarisation  $\vec{P}^{(n)}$  ergibt sich durch die Ortsinversion lediglich eine Vorzeichenänderung, d.h.  $\vec{E}' \stackrel{!}{=} -\vec{E}$  bzw.  $\vec{P}'^{(n)} \stackrel{!}{=} -\vec{P}^{(n)}$ .

In zentrosymmetrischen Medien ist somit die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung der niedrigste nichtlinear optische Term, der auftreten kann.

Zur weiteren Betrachtung der Auswirkungen der nichtlinearen Polarisation wird vom Einfall einer Laserstrahlung, deren elektrisches Feld  $\vec{E}$

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r}, t) \cdot \exp[-i(\omega t - \vec{k}\vec{r})] + k.k. \quad (3.6)$$

durch eine ebene Welle mit variabler Amplitude  $\vec{E}_0(\vec{r}, t)$  genähert werden kann, ausgegangen. Hierbei steht  $k.k.$  für das komplex Konjugierte des vorangegangenen Summanden,  $\omega$  für die Frequenz des Lichtfeldes und  $\vec{k}$  für den Wellenvektor.

Die Polarisationen zweiter bzw. dritter Ordnung lassen sich dann gemäß Gleichung (3.3) schreiben als

$$\vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} (\vec{E}_0(\vec{r}, t))^2 \left[ 2 + e^{-i(2\omega t - 2\vec{k}\vec{r})} + k.k. \right] \quad (3.7)$$

$$\vec{P}^{(3)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} (\vec{E}_0(\vec{r}, t))^3 \left[ 3e^{-i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} + e^{-i(3\omega t - 3\vec{k}\vec{r})} + k.k. \right]. \quad (3.8)$$

Der erste Term in Gleichung (3.7), ohne Frequenzabhängigkeit, sorgt für die sogenannte optische Gleichrichtung und entspricht einem statischen elektrischen Feld. Der zweite Term zeigt eine Oszillation der Elektronen des polarisierten Mediums um ihren Atom- bzw. Molekülrumpf mit der doppelten Laserfrequenz  $2\omega$ . Analog zum Hertz'schen Dipol führt dies zu einer Strahlungsemission mit der Frequenz der Ladungsträgerschwingung, hier mit der doppelten Frequenz, respektive der halben Wellenlänge der ursprünglichen Laserstrahlung. Diese Strahlung wird als zweite Harmonische bezeichnet (engl. *second harmonic generation*, **SHG**). Bei der Überlagerung zweier elektrischer Felder der Form wie in Gleichung (3.6) ergibt sich für die Polarisation

chung (3.6) mit unterschiedlichen Frequenzen  $\omega_1$  und  $\omega_2$  entstehen Terme, die von  $(\omega_1 + \omega_2)$  bzw. von  $(\omega_1 - \omega_2)$  abhängig sind. Der Effekt, der solche Laserstrahlung erzeugt, wird als Summenfrequenzbildung (engl. *sum frequency generation*, **SFG**) bzw. Differenzfrequenzbildung (engl. *difference frequency generation*, **DFG**) bezeichnet.

Eine äquivalente Betrachtung gilt auch für die Terme der Polarisierung dritter Ordnung. Wie in Gleichung (3.8) zu sehen, entsteht hierbei unter anderem die sogenannte *dritte Harmonische*, (engl. *third harmonic generation*, **THG**) die mit  $3\omega$  schwingt.

Der Zusammenhang zwischen der zeitlichen Änderung der Polarisierung und der daraus resultierenden Erzeugung neuer elektrischer Felder wird beschrieben durch die Wellengleichung im dielektrischen Medium [69]

$$\Delta \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(\vec{r}, t). \quad (3.9)$$

Unter Verwendung der Gleichungen (3.2) und (3.5) sowie der Definition des Brechungsindex  $n_0 = \sqrt{1 - \chi^{(1)}}$ , lässt sich dieser Ausdruck umformen zu

$$\Delta \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{NL}(\vec{r}, t). \quad (3.10)$$

Das elektrische Feld  $\vec{E}$  und die nichtlineare Polarisierung  $\vec{P}^{NL}$  können über Fouriertransformation durch Komponenten mit den Frequenzen  $\tilde{\omega}$  dargestellt werden. Für diese Frequenzkomponenten gilt [70]:

$$\vec{E}_{\tilde{\omega}}(\vec{r}, t) = \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r}, t) \cdot \exp[-i(\tilde{\omega}t - \vec{k}_{\tilde{\omega}}\vec{r})] + k.k. \quad (3.11)$$

$$\vec{P}_{\tilde{\omega}}^{NL}(\vec{r}, t) = \vec{P}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r}, t) \cdot \exp[-i(\tilde{\omega}t - \vec{k}_{\tilde{\omega}}\vec{r})] + k.k. \quad (3.12)$$

Da diese Frequenzkomponenten ein linear unabhängiges Funktionensystem darstellen, muss jede Frequenz  $\tilde{\omega}$  Gleichung (3.10) erfüllen. Mithilfe dieser Fourierdarstellung lassen sich die Zeitableitungen aus Gleichung (3.10) lösen zu:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[ \frac{\partial}{\partial t} \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r}, t) \cdot \exp[-i(\tilde{\omega}t - \vec{k}_{\tilde{\omega}}\vec{r})] + k.k. \right] \approx -\tilde{\omega}^2 \vec{E}_{\tilde{\omega}}(\vec{r}, t). \quad (3.13)$$

In oben genannter Lösung wurde die sogenannte *slowly varying envelope approximation*, kurz **SVEA**, angewendet. Diese Näherung beruht auf der physikalisch sinnvollen Annahme, dass die zeitliche Variation der einhüllenden Amplitude des Lichtfeldes langsam ist gegenüber der Lichtfrequenz. Analog lässt sich die nichtlineare Polarisierung umformen und nähern. Durch Einsetzen dieser Näherungen in Gleichung (3.10) vereinfacht sich diese zu

$$\Delta \vec{E}_{\tilde{\omega}}(\vec{r}, t) + k_{\tilde{\omega}}^2 \vec{E}_{\tilde{\omega}}(\vec{r}, t) = -\frac{\tilde{\omega}^2}{\epsilon_0 c^2} \vec{P}_{\tilde{\omega}}^{NL}(\vec{r}, t). \quad (3.14)$$

Hierbei wurde auch die Dispersionsrelation  $k_{\tilde{\omega}}^2 = |\vec{k}_{\tilde{\omega}}|^2 = (n_{\tilde{\omega}}\tilde{\omega}/c)^2$  eingesetzt.

Die von einem fokussierten Laserfeld  $\vec{E}$  induzierte nichtlineare Polarisierung  $\vec{P}^{NL}$  stellt somit einen Quellterm für neue elektrische Felder  $\vec{E}_{\tilde{\omega}}$  der Frequenz  $\tilde{\omega}$  dar.

### 3.1.2 Paraxiale Näherung

Grundlage der paraxialen Näherung ist eine kleine Änderung der Feldamplitude eines elektromagnetischen Feldes in transversaler Richtung. Der Gaußstrahl stellt eine Lösung der paraxial genäherten Wellengleichung dar. Anders als bei ebenen Wellen ist die Amplitude eines Gaußstrahls nicht

konstant. Für das elektrische Feld eines solchen Strahls und die daraus resultierende nichtlineare Polarisation kann folgender Ansatz gewählt werden

$$\vec{E}_{\tilde{\omega}}(\vec{r}, t) = \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r}) \cdot e^{-i(\tilde{\omega}t - \vec{k}_{\tilde{\omega}}\vec{r})} + k.k. \quad (3.15)$$

$$\vec{P}_{\tilde{\omega}}^{NL}(\vec{r}, t) = \vec{P}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r}) \cdot e^{-i(\tilde{\omega}t - \vec{k}'_{\tilde{\omega}}\vec{r})} + k.k.. \quad (3.16)$$

Durch die unterschiedlichen Wellenzahlen  $k$  und  $k'$  des elektrischen Feldes, bzw. der Polarisation, wird die Dispersion des Mediums berücksichtigt. Hier wurde die mittlere Intensität in einem Laserpuls betrachtet, das heißt es wurde eine zeitlich konstante Laseramplitude angenommen. Wird dieser Ansatz in die Wellengleichung (3.14) eingesetzt, führt dies zu

$$\vec{\nabla}_T^2 \vec{E}_{\tilde{\omega}}(\vec{r}) + \left( \frac{\partial^2 \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r})}{\partial z^2} + 2ik_{\tilde{\omega}} \frac{\partial \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r})}{\partial z} \right) e^{-i(\tilde{\omega}t - \vec{k}'_{\tilde{\omega}}\vec{r})} = -\frac{\tilde{\omega}^2}{\epsilon_0 c^2} \vec{P}_{\tilde{\omega}}^{NL}(\vec{r}). \quad (3.17)$$

Neben der Annahme einer Ausbreitung des Laserlichtes in  $z$ -Richtung, wurde auch die Operatoridentität  $\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} = \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \nabla_T^2$  verwendet. Das Subskript  $T$  bezeichnet hier die Richtungen transversal zur Ausbreitungsrichtung hin. Da die räumliche Oszillation des elektrischen Feldes deutlich schneller ist als die Änderung der Einhüllenden, kann auch hier die Näherung der langsam variierenden Einhüllenden (SVEA) vorgenommen werden, sodass gilt

$$k_{\tilde{\omega}}^2 |\vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r})| \gg k \left| \frac{\partial \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r})}{\partial z} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r})}{\partial z^2} \right|. \quad (3.18)$$

Man erhält so aus (3.17) die paraxiale, nichtlineare Wellengleichung [69]

$$\vec{\nabla}_T^2 \vec{E}_{\tilde{\omega}}(\vec{r}) + 2ik_{\tilde{\omega}} \frac{\partial \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r})}{\partial z} = -\frac{\tilde{\omega}^2}{\epsilon_0 c^2} \vec{P}_{0,\tilde{\omega}}^{NL}(\vec{r}) \cdot e^{i\Delta k z}, \quad (3.19)$$

mit der Phasenfehlانpassung  $\Delta k = k'_{\tilde{\omega}} - k_{\tilde{\omega}}$ .

Für verschwindende Quellterme  $\vec{P}_{\tilde{\omega}}^{NL}(\vec{r})$ , das heißt für eine frei propagierende optische Welle, ist ein Strahl mit gaußförmiger, transversaler Intensitätsverteilung eine Lösung der homogenen, paraxialen Wellengleichung (3.19)

$$\vec{\nabla}_T^2 \vec{E}_{\tilde{\omega}}(\vec{r}) + 2ik_{\tilde{\omega}} \frac{\partial \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r})}{\partial z} = 0. \quad (3.20)$$

Der Gaußstrahl, mit einem in  $x$ -Richtung linearpolarisierten elektrischen Feld, wird beschrieben durch [69]

$$\vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(\vec{r}) = \vec{E}_{0,\tilde{\omega}}(r, z) = A_{0,\tilde{\omega}} \frac{w_0}{w(z)} e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} e^{\frac{ik_{\tilde{\omega}} r^2}{2R'(z)}} e^{i(kz + \phi'(z))}. \quad (3.21)$$

Der in Abbildung 3.1 dargestellte Verlauf des transversalen  $1/e$ -Strahlradius entlang der Ausbreitungsrichtung wird beschrieben durch den Zusammenhang [71]

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2} = w_0 \sqrt{1 + \left( \frac{z}{z_R} \right)^2}. \quad (3.22)$$

Hierbei gibt  $w_0$  den Radius der Strahltaile an. Der Krümmungsradius der Wellenfront wird angegeben durch

$$R'(z) = z \left( 1 + \left( \frac{\pi w_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right) = z \left( 1 + \left( \frac{z_R}{z} \right)^2 \right), \quad (3.23)$$

während

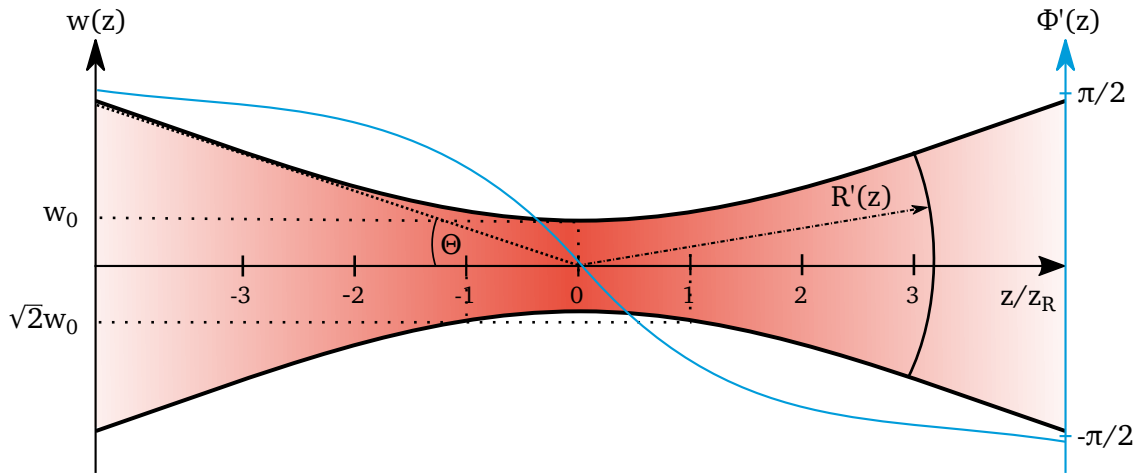
$$\phi'(z) = -\arctan\left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right) = -\arctan\left(\frac{z}{z_R}\right) \quad (3.24)$$

die Gouy-Phase des Gaußstrahls verkörpert.

Die Variable  $z_R$  bezeichnet die sogenannte *Rayleigh-Länge* und ist über die Wellenlänge definiert:

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}. \quad (3.25)$$

Sie gibt die Propagationsstrecke bis zur Verdopplung der Strahlquerschnittsfläche an und dient als Maß für die longitudinale Ausdehnung des Fokus dient.



**Abbildung 3.1:** Laterale Ausdehnung eines Gaußstrahls. Die linke Ordinatensachse zeigt die Strahlausdehnung. In der Entfernung einer Rayleigh-Länge  $z_R$  von der Strahltaile ( $2w_0$ ) verdoppelt sich die querschnittsfläche des Gausstrahl. Der Winkel  $\Theta$  gibt die Divergenz des Strahls an. Der blaue Verlauf stellt die Phase  $\phi'(z)$  des Gausstrahl dar (rechte Ordinatensachse).  $R'(z)$  gibt den Krümmungsradius einer exemplarischen Wellenfront an.

Im Fernfeld, also für große Entfernungen  $z$  zur Strahltaile, ist die Vergrößerung des Strahlradius  $w(z)$  linear. Der Winkel zwischen dieser approximierten Geraden und der optischen Achse wird als Divergenzwinkel  $\Theta$  bezeichnet und ist in Abbildung 3.1 eingezeichnet. Der Divergenzwinkel kann im Fernfeld durch

$$\Theta = \frac{\lambda}{\pi w_0}. \quad (3.26)$$

Da im Aufbau zur vorliegenden Arbeit ein Objektiv zur Fokussierung benutzt wird, ist es an dieser Stelle dienlich den Ausdruck der *Numerischen Apertur*, kurz **NA**, einzuführen. Die Numerische Apertur ist definiert über den Akzeptanzwinkel eines Objektivs. Es gilt:

$$NA = n \sin[\Theta]. \quad (3.27)$$

---

### 3.1.3 Brechungsindex

---

Die komplexe Konstante  $n_0 = n' - i\kappa$  wird als linearer Brechungsindex bezeichnet. Der Realteil  $n'$  gibt die Dispersion, der Imaginärteil  $\kappa$  die Absorption einer elektromagnetischen Welle im Medium an.

Allgemein gilt für den Brechungsindex [69]

$$n = \sqrt{1 + \chi_{\text{eff}}}. \quad (3.28)$$

Der effektive Brechungsindex ist hierbei gegeben durch

$$\chi_{\text{eff}} = \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|E(\omega)|^2. \quad (3.29)$$

Für den linearen Brechungsindex wird lediglich der lineare Anteil der Suszeptibilität betrachtet und es gilt

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}. \quad (3.30)$$

Unter Betrachtung nichtlinearer Effekte, wie sie bei intensiven Laserstrahlen auftreten, muss ein intensitätsabhängiger Anteil des Brechungsindex berücksichtigt werden. Dieser, oft als Brechungsindex zweiter Ordnung bezeichnete Anteil, ist ein Maß für die Änderung des Brechungsindex bei wachsender Laserintensität. Der daraus folgende Zusammenhang ist bekannt als *optischer Kerr-Effekt*

$$n = n_0 + 2\bar{n}_2|E(\omega)|^2. \quad (3.31)$$

$E(\omega)$  gibt dabei die Amplitude eines optischen Feldes der Form  $E(t) = E(\omega)\exp[-i\omega t] + k.k$  an.

Der nichtlineare Anteil  $\bar{n}_2$  kann unter Beachtung der Nichtlinearität bis zur dritten Ordnung angegeben werden als

$$\bar{n}_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0}. \quad (3.32)$$

Wird der Brechungsindex abhängig von der Laserintensität  $I$  in der Form  $n = n_0 + n_2I$  angegeben, so folgt aus der Äquivalenz zu Gleichung (3.31) unter Verwendung des angepassten Brechungsindex

$$n_2 = \frac{\bar{n}_2}{n_0\epsilon_0 c}. \quad (3.33)$$

Hierbei wurde die zeitlich gemittelte Intensität des Feldes  $I = 2n_0\epsilon_0 c|E(\omega)|^2$  angenommen [69].

Auch beim intensitätsabhängigen, nichtlinearen Brechungsindex kann somit ein direkter Zusammenhang zur Suszeptibilität gefunden werden:

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2\epsilon_0 c}\chi^{(3)}. \quad (3.34)$$

---

## 3.2 Laserpulse

---

Um die für die Zwei-Photonen-Polymerisation benötigte Photonendichte, respektive Lichtintensität, zu erreichen, sind fokussierte, gepulste Laser unumgänglich. Erst diese Technik macht es möglich, trotz des geringen Zwei-Photonen-Absorption-Wirkungsquerschnitts eine Mehrphotonenpolymerisation zu initiieren.



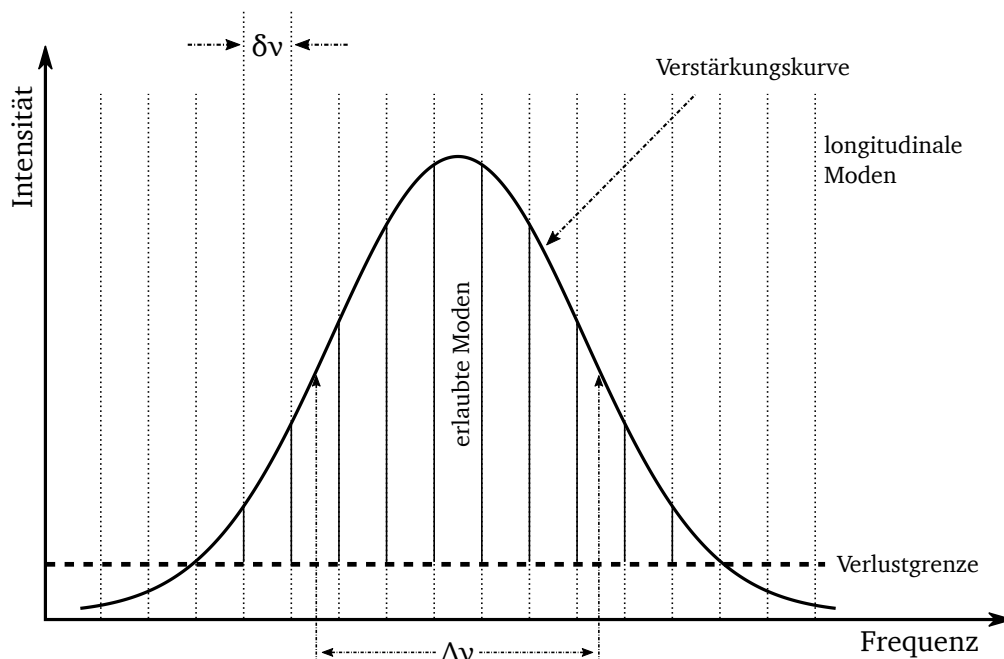
Im folgenden Unterkapitel soll nach der Erläuterung der *Modenkopplung*, einem weit verbreiteten Verfahren zur Erzeugung ultrakurzer Laserpulse, der Kerr-Effekt näher betrachtet werden. Der Kerr-Effekt wird beim Modenkoppeln ausgenutzt, bildet aber auch die Grundlage zum Verständnis der Dispersion, welche im Abschnitt 3.2.3 erläutert wird. Geschlossen wird das Unterkapitel mit der Betrachtung der Funktionsweise eines Prismenkompressors zur optischen Kompression von Lichtpulsen und der Messmethode der Autokorrelation zur Bestimmung der zeitlichen Ausdehnung ultrakurzer Pulse.

### 3.2.1 Modenkopplung

Das folgende Unterkapitel befasst sich zunächst mit den mathematischen Grundlagen der Modenkopplung. Anschließend werden sowohl die aktive- als auch die passive Modenkopplung erläutert.

#### Mathematische Grundlagen

Die Modenkopplung (engl. *mode locking*) ist ein Verfahren zur Erzeugung ultrakurzer Laserpulse. Mit diesem Verfahren können Pulslängen im Piko- und Femtosekundenbereich erreicht werden. Das Prinzip beruht auf der Superposition verschiedener, im Laserresonator schwingender Moden unterschiedlicher Frequenz aber fester Phasenbeziehung. Die kürzeste erreichbare Pulslänge hängt hierbei von dem zur Verfügung stehenden Frequenzbereich der Strahlung  $\Delta\nu$  ab. In Abbildung 3.2 gibt  $\Delta\nu$  die Frequenzen im Bereich der vollen Breite bei halber Höhe (**FWHM**, engl. *full-width-half-maximum*) der Intensität der Verstärkungskurve an. Im Resonator können nur die longitudinalen Moden verstärkt werden, die von dieser Kurve abgedeckt werden. Der Frequenzabstand der Moden  $\delta\nu = c/(2L)$ , die an der Superposition teilnehmen, bestimmt die Repetitionsrate des Lasersystems.



**Abbildung 3.2:** Von allen im Resonator möglichen longitudinalen Moden werden nur diejenigen verstärkt, die von der Verstärkungskurve abgedeckt werden. Der Frequenzabstand der Moden ist mit  $\delta\nu$  bezeichnet. Die spektrale Breite bei FWHM ist mit  $\Delta\nu$  eingetragen. Die Verlustgrenze zeigt die Höhe der optischen Verluste im Resonator an.

Für den Modenabstand  $\delta\omega$  im Resonator gilt [72]:

$$\delta\omega = 2\pi \delta\nu = 2\pi \frac{c}{2L} = \frac{\pi c}{L}. \quad (3.35)$$

Hierbei steht  $L$  für die Resonatorlänge und  $c$  für die Lichtgeschwindigkeit.

Unter der Prämisse, dass  $\omega_c$  die Zentralfrequenz des Lasers darstellt, gilt für die Verteilung der weiteren Moden

$$\omega_n = \omega_c + n \delta\omega \quad \text{mit} \quad n \in \mathbb{Z}. \quad (3.36)$$

Das elektrische Feld  $E(t)$ , das sich aus der Überlagerung von  $2N + 1$  unterschiedlichen Moden im Resonator einstellt, lässt sich mit der Phase  $\phi_n(t)$  der  $n$ -ten Mode schreiben als

$$E(t) = \sum_{n=-N}^N E_n e^{i\omega_n t} e^{in\phi_n(t)}. \quad (3.37)$$

Im Normalfall schwingen die Moden mit beliebigen Phasenunterschieden zueinander. Eine feste Phasenbeziehung muss gezielt angestoßen werden. Wie dies zu erreichen ist, wird im anschließenden Abschnitt erläutert. Aus Gleichung (3.37) wird jedoch klar, dass für gekoppelte Moden

$$\phi_j(t) \stackrel{!}{=} \phi_k(t) \quad \forall j, k \quad (3.38)$$

gelten muss.

Um die mathematische Darstellung für die Erklärung des Effekts möglichst zu vereinfachen, wird hier  $\phi_n(t) = 0 \forall n$  gewählt. Unter der Annahme, dass sich die Moden, so wie in Abbildung 3.2 angedeutet, gaußförmig um die zentrale Frequenz  $\omega_c$  verteilen, gilt für die Gesamtwellenfunktion aus Gleichung (3.37) [73]:

$$E(t) = e^{i\omega_c t} \sum_{n=-N}^N E_n e^{in\delta\omega t} \quad \text{mit} \quad E_n = E_0 \exp \left[ - \left( \frac{2n\delta\omega}{\Delta\omega_{\text{FWHM}}} \right)^2 \ln 2 \right]. \quad (3.39)$$

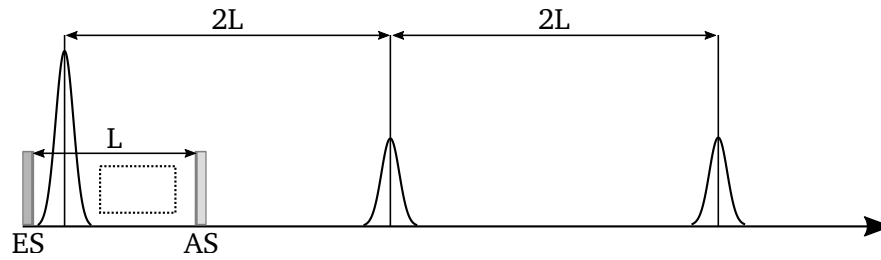
$E_0$  ist die Amplitude der zentralen Mode mit der Frequenz  $\omega_c$ . Die volle Breite bei halber Höhe ist durch  $\Delta\omega_{\text{FWHM}}$  an dieser Stelle angegeben.

Der Verlauf der Amplituden der aufsummierten, elektrischen Felder kann durch eine langsam variierende Funktion  $k(t)$  als Einhüllende beschrieben werden. Dies ist als Amplitudenmodulation der Zentralfrequenz zu verstehen:

$$k(t) = \sum_{-\infty}^{\infty} E_n e^{in\delta\omega t}. \quad (3.40)$$

Durch das Betrachten der als Fourier-Reihe entwickelten Funktion  $k(t)$  kann geschlossen werden, dass  $k(t)$  eine reelle, periodische Funktion mit der Periodenlänge  $\tau_{\text{RT}} = 2\pi/\delta\omega = 2L/c$  ist. Wobei  $\tau_{\text{RT}}$  genau der Umlaufzeit eines Wellenpaketes im Resonator und somit dem zeitlichen Abstand zwischen zwei Lichtpulsen entspricht.

Anschaulich ist dieser Zusammenhang klar, da der Laserpuls zwischen den beiden Spiegeln, die sich im Abstand  $L$  an den Enden des Resonators befinden, oszilliert und bei jedem Durchgang ein Bruchteil des Pulses ausgekoppelt wird. Auf diese Weise ergibt sich eine räumliche Trennung der Einzelpulse von  $2L$ . Die zeitliche Trennung der Pulse beläuft sich somit auf  $\tau_{\text{RT}} = 2L/c$ . Dieser Zusammenhang wird in Abbildung 3.3 verdeutlicht.



**Abbildung 3.3:** Der Endspiegel *ES* und der Auskoppelspiegel *AS* befinden sich in einem Abstand *L* voneinander und bilden die äußeren Enden des Resonators. Der Puls oszilliert zwischen diesen Spiegeln. Ein Bruchteil des Pulses wird dabei am Auskoppelspiegel ausgekoppelt. So ergibt sich ein räumlicher Abstand von  $2L$  zwischen zwei Pulsen. Die gestrichelte Box zwischen den beiden Spiegeln repräsentiert das verstärkende Medium sowie weitere Optiken.

Im Falle einer gaußförmigen Einhüllenden und der Näherung der Fourier-Reihe durch ein Integral lässt sich zeigen, dass für die Dauer eines Pulses  $\tau_{\text{Puls}}$ , definiert über die Halbwertsbreite der Intensität als Funktion der Zeit [73], gilt

$$\tau_{\text{Puls}} = \frac{2\sqrt{2}}{\pi \Delta\omega_{\text{FWHM}}} \ln 2 \quad \Rightarrow \quad \tau_{\text{Puls}} \propto \frac{1}{\Delta\omega_{\text{FWHM}}}. \quad (3.41)$$

Anzumerken ist, dass die letzte Relation für beliebige einhüllende Funktionen gilt.

Gleichung (3.41) ist als *time-bandwidth product* bekannt und besagt, dass für kürzere Pulse eine größere spektrale Breite erforderlich ist. Dieser Zusammenhang wird in Abbildung 3.4 veranschaulicht. In Abbildung 3.4 a) ist der Intensitätsverlauf einer Mode der Form  $I(t) \propto E^2(t) \propto \sin^2(\omega t)$  dargestellt. Die Abbildungen b)-d) zeigen die Superposition von zwei, fünf und fünfzehn jeweils zueinander phasenstabilen Moden. Es ist zu erkennen, dass mit steigender Anzahl gekoppelter Moden sowohl die Pulsdauer sinkt, als auch die Intensität der Pulse steigt.

---

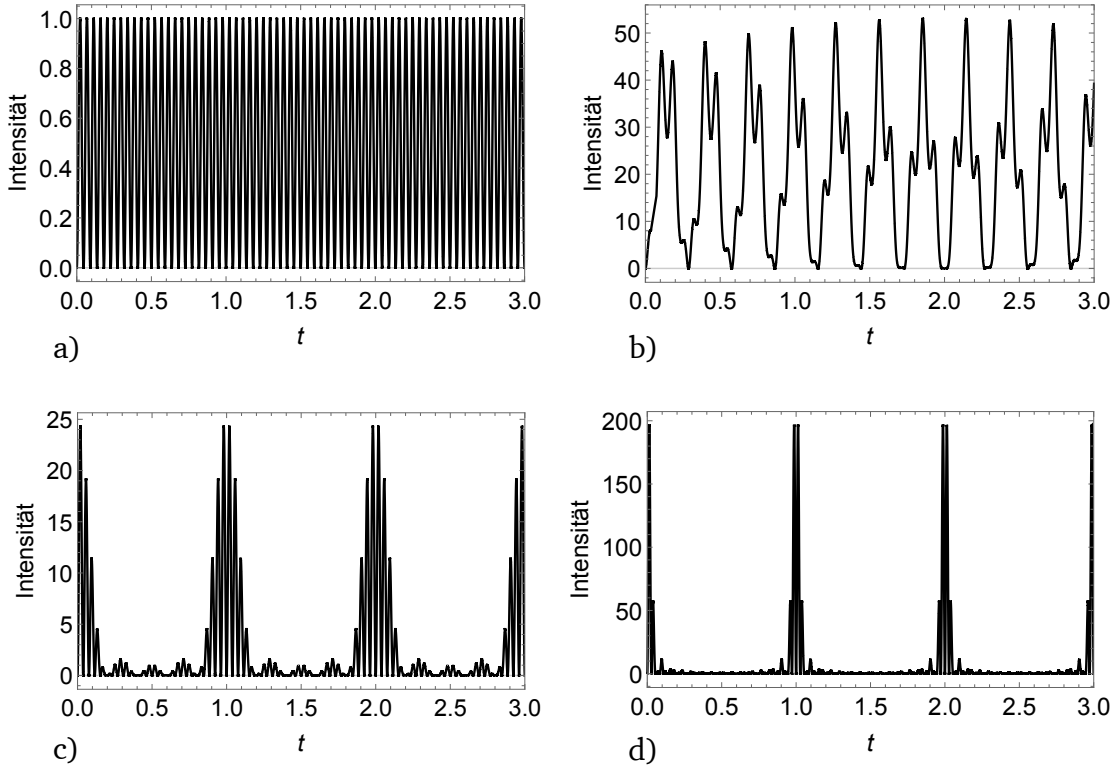
## Aktive und passive Modenkopplung

---

Wie bereits erwähnt, sind nicht automatisch alle im Resonator anschwingenden Moden phasenstabil zueinander. Um eine Modenkopplung zu erreichen, muss in das System eingegriffen werden. Durch periodisches Ändern der Verluste bzw. der Verstärkung im Resonator werden nur Frequenzen verstärkt, die zueinander phasenstabil, also modengekoppelt sind. Grundlegend wird zwischen *aktiver* und *passiver Modenkopplung* unterschieden.

### Aktive Modenkopplung

Bei dem Verfahren der *aktiven Amplituden-Modulation* zur Modenkopplung werden die optischen Verluste im Resonator durch ein aktiv auf die Resonatorumlaufzeit synchronisiertes Element periodisch geändert. Dies sorgt dafür, dass die gleichen Wellenpakete immer wieder verstärkt werden, während andere Moden sukzessiv verschwinden. Durch das gezielte Verstärken im Zentrum des erzeugten Pulses, verbunden mit den erhöhten Verlusten an dessen Flanken, wird dieser gleichzeitig verstärkt und zeitlich eingeschränkt. Dieses Wechselspiel zwischen der Verstärkung kurzer Pulse und der Erhöhung der Resonatorverluste ist in Abbildung 3.5 dargestellt.



**Abbildung 3.4:** Schematische Darstellung von modengekoppelten Pulsen. Abbildung a) zeigt den zeitlichen Intensitätsverlauf eines Pulses der Form  $I(t) = E^2(t) = \sin^2(\omega t)$ . Abbildung b) zeigt die Superposition von zwei Moden mit fester Phasenbeziehung. Die Abbildungen c) und d) verdeutlichen die Entstehung kürzerer Pulse mit höherer Intensität durch Kopplung steigender Anzahl an Moden durch die Superposition von fünf bzw. fünfzehn Moden. Zu beachten ist die Änderung der Skala der linken Ordinatenachse (Intensität).

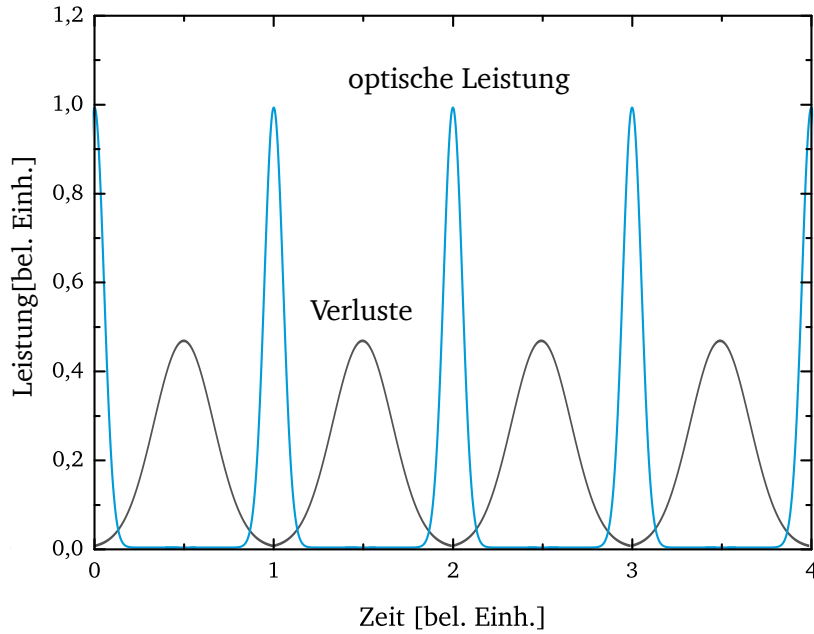
Unter der Annahme einer cosinusförmigen Modulation der Verluste mit der Winkelfrequenz  $\Omega$  und der Modulationstiefe  $\alpha$  ergibt sich für die zeitliche Entwicklung der  $n$ -ten Mode mit der Frequenz  $\omega_n$  [73]

$$E_n(t) = E_0 \cos(\omega_n t + \phi_n) [1 - \alpha(1 - \cos(\Omega t + \phi))] \quad (3.42)$$

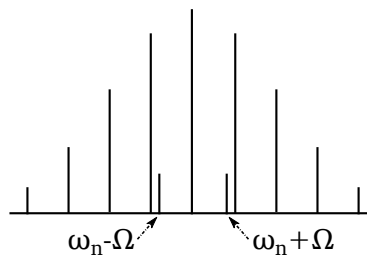
$$\begin{aligned} &= E_0(1 - \alpha) \cos(\omega_n t + \phi_n) + E_0 \frac{\alpha}{2} \cos[(\omega_n - \Omega)t + \phi_n - \phi] \\ &\quad + E_0 \frac{\alpha}{2} \cos[(\omega_n + \Omega)t + \phi_n - \phi]. \end{aligned} \quad (3.43)$$

In Gleichung (3.43) ist zu sehen, dass im Frequenzraum zwei Seitenbänder bei der Verstärkung entstehen.

Wird die Frequenz der Modulation der Verluste ( $\Omega/2\pi$ ) nahe dem Abstand der Moden im Frequenzraum ( $c/2L$ ) gewählt, liegen diese Seitenbänder sehr nahe bei der vorherigen bzw. nachfolgenden Mode ( $n \mp 1$ ). In dieser Situation werden sowohl die Seitenbänder als auch die primären Moden verstärkt und es kann keine optimale Verstärkung erreicht werden. Diese Lage der Seitenbänder ist in Abbildung 3.6 illustriert. Liegen die Seitenbänder allerdings genau auf den Nachbarmoden, sind die longitudinalen Moden über ihre Seitenbänder phasenstabil gekoppelt und es liegt die optimale Konfiguration zur Verstärkung vor. Diese Art der Modenkopplung kann zum Beispiel mithilfe eines akusto-optischen Modulators (kurz **AOM**) im Resonator erreicht werden. Auf die Funktionsweise eines akusto-optischen Modulators wird in Unterkapitel 4.1 eingegangen.



**Abbildung 3.5:** Zeitlicher Verlauf der Resonatorverluste und der daraus resultierenden Verstärkung einzelner Pulse. Bei der aktiven Modenkopplung durch Amplituden-Modulation werden durch gezieltes, periodisches Erhöhen der Resonatorverluste bestimmte Moden verstärkt, während andere verschwinden. Es entsteht ein modengekoppelter, ultrakurzer Laserpuls.



**Abbildung 3.6:** Wird die Frequenz der Modulation der Verluste nicht korrekt gewählt, liegen die entstehenden Seitenbänder sehr nahe bei der vorherigen bzw. nachfolgenden Mode ( $n \mp 1$ ).

Eine weitere Methode zur aktiven Modenkopplung ist die sogenannte *Frequenzmodulation*. Hierbei wird dem zu verstärkenden Wellenpaket eine periodische Frequenzänderung aufgeprägt. Dies ist zum Beispiel mit einer Pockelszelle möglich. Für die Mode  $n$  gilt dann

$$E_n(t) = E_0 \sin[\omega_0 t + \alpha \cos(\Omega t)] \quad (3.44)$$

mit der Modulationsfrequenz  $\Omega$  und der Modulationstiefe  $\alpha$ .

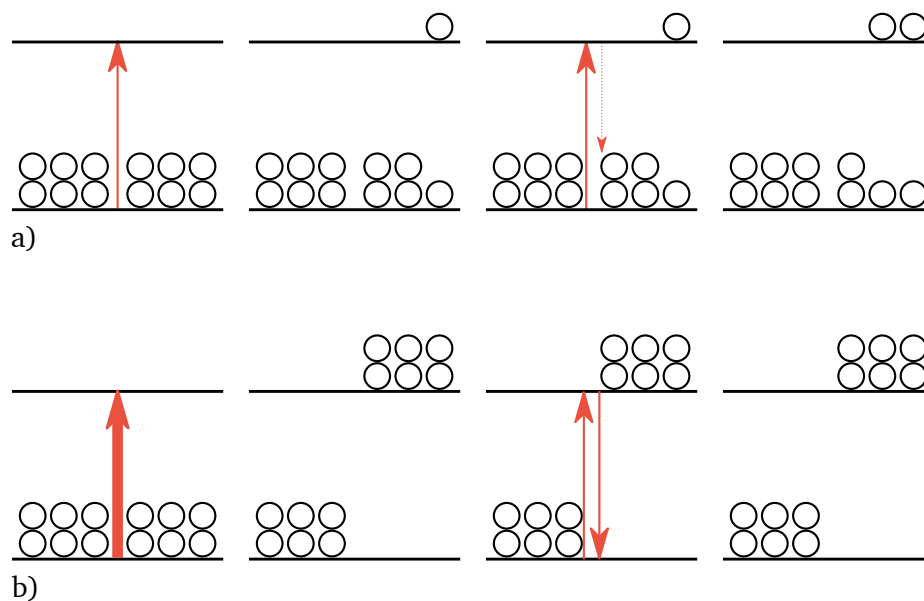
Auch hier entstehen zusätzliche Frequenzen bei  $\omega_0 \pm q\Omega$ . Im Gegensatz zur Amplituden-Modulation entstehen jedoch schon durch eine einzelne Welle eine unendliche Anzahl an Seitenbändern. Genau wie zuvor wird nur dann eine Verstärkung der Pulse erreicht, wenn gilt

$$\Omega = \frac{c}{2L}. \quad (3.45)$$

### Passive Modenkopplung

Neben diesen und weiteren Möglichkeiten zur aktiven Modenkopplung gibt es auch eine sogenannte *passive Modenkopplung*. Hierbei werden zum Beispiel sättigbare Absorber in den Resonator eingebracht, um so eine Güteschaltung mit variierenden Verlusten im Resonator zu erzeugen. Die Konfiguration eines solchen Absorbers wird so gewählt, dass Licht, das nicht zum Hauptpuls gehört, vom Absorber absorbiert wird und somit nicht weiter verstärkt wird. Der Hauptpuls bringt allerdings schnell genügend Energie in das Medium ein, um dieses zu sättigen. Nachdem 50 % der Atome angeregt wurden, ist die Wahrscheinlichkeit für eine weitere Absorption genauso groß wie die Wahrscheinlichkeit für eine stimulierte Emission und der Absorber wird quasi transparent.

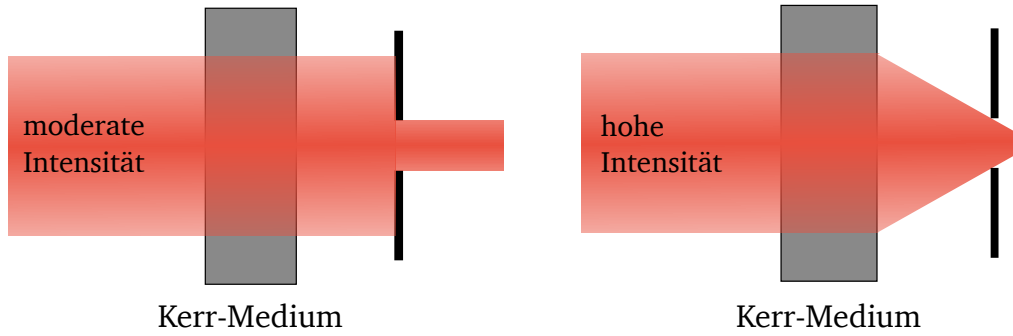
In Abbildung 3.7 wird das Verhalten des Absorbers, abhängig von der Pulsleistung, dargestellt.



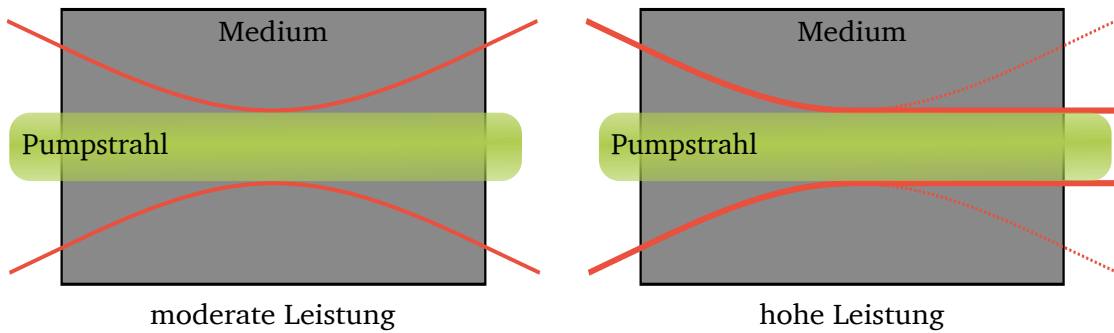
**Abbildung 3.7:** Bei geringer Laserleistung, so wie in a) dargestellt, werden nur wenige Atome angeregt. Die meisten davon relaxieren durch spontane Emission. Nur wenige tragen zur Verstärkung des Nachfolgepulses durch stimulierte Emission bei. Die Absorption für nachfolgende Pulse bleibt stets hoch. Das in Abbildung b) gezeigte Laserfeld ist stark genug, um quasi instantan für eine 50 %-ige Anregung im Absorber zu sorgen. Die nachfolgende Strahlung erfährt dadurch keine netto Absorption mehr, da Absorption und stimulierte Emission zu gleichen Teilen stattfindet.

Bei der *Kerr-Linsen-Modenkopplung* (engl. *Kerr lens mode locking*) wird die, durch den optischen Kerr-Effekt hervorgerufene, Selbstfokussierung genutzt. Die Grundlagen dieses Effektes werden in Abschnitt 3.2.2 diskutiert. Bei dieser besonderen Art der passiven Modenkoppelung dient das Verstärkermedium selbst als sättigbarer Absorber. Bei diesem Verfahren wird außerdem zwischen der Modenkopplung mit harter und der mit weicher Apertur unterschieden. Im Fall der harten Apertur wird die Selbstfokussierung bei hohen Intensitäten genutzt, um die Pulse mit einer Irisblende zu selektieren. Wie in Abbildung 3.8 dargestellt, passieren nur die intensiven, der Selbstfokussierung unterworfenen Pulse die Apertur ungehindert. Zu schwache Moden werden von der Apertur zu großen Teilen geblockt und verschwinden nach wenigen Umläufen durch den Resonator.

Wird die Selbstfokussierung genutzt um den Strahlüberlapp von Puls und Pumplicht im Verstärkermedium zu optimieren, liegt *Kerr-Linsen-Modenkopplung* mit weicher Apertur vor. Durch den geringeren Überlapp verringert sich die Pumpeffizienz für weniger intensive Laserpulse und sie verschwinden. Diese Abhängigkeit des Strahlüberlapps von der Laserintensität ist in Abbildung 3.9 verdeutlicht.



**Abbildung 3.8:** Die Intensität des linken Lichtstrahls reicht nicht aus um Selbstfokussierung zu erzeugen. Der Strahl ist zu groß und wird zu großen Teilen von der Irisblende geblockt. Im rechten Teilbild reicht die Intensität aus, so dass der Strahl mithilfe des Kerr-Effekts durch die Blende fokussiert wird.



**Abbildung 3.9:** Bei der Kerr-Linsen-Modenkopplung mit weicher Apertur wird die Selbstfokussierung genutzt, um den Überlapp von Pumpstrahl und Oszillatorstrahlung zu verbessern. So wird nur ausreichend intensive Strahlung verstärkt.

### 3.2.2 Kerr-Effekt

Beide im vorherigen Unterkapitel genannten Verfahren zur passiven Modenkopplung nutzen die Selbstfokussierung. Zur Selbstfokussierung kommt es durch den *Kerr-Effekt*, welcher die geänderten Propagationseigenschaften intensiver Laserstrahlen in einem Medium beschreibt. Diese Änderungen entstehen durch eine spontane, nichtlineare Antwort des Mediums. Beschrieben werden kann dieser Effekt durch die Intensitätsabhängigkeit des nichtlinearen Brechungsindex, wie er in Abschnitt 3.1.3 eingeführt wurde

$$n = n_0 + n_2 I. \quad (3.46)$$

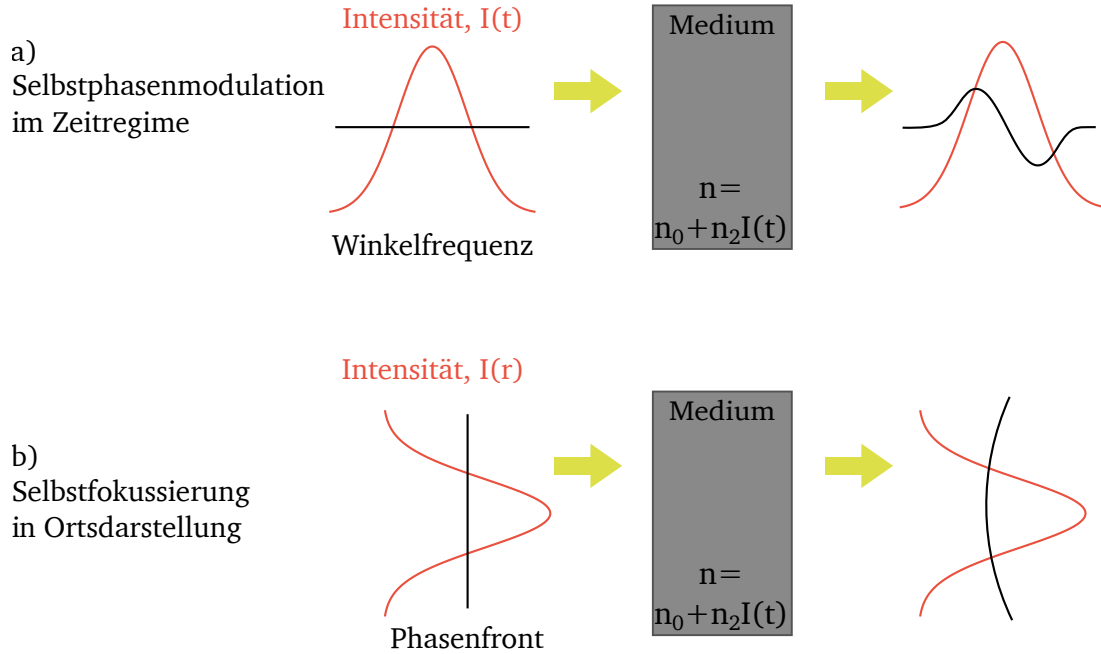
Nach der Propagation eines Laserpulses durch ein solches, nichtlineares Medium der Dicke  $d$  hat sich die Phase des Lasers gemäß

$$\phi_t = nkd = n_0 kd + n_2 Ikd \quad (3.47)$$

geändert [30]. Aus Gleichung (3.47) ergibt sich unter Annahme einer zeitlich gaußförmigen Intensitätsverteilung  $I_t = I_0 \exp[-2t^2/\tau_p^2]$  des betrachteten Laserpulses für dessen Frequenz  $\omega$

$$\omega = -\frac{d}{dt}\phi_t = -n_2 kd \frac{d}{dt}I = \frac{4n_2 kd I_0 t}{\tau_p^2} \exp\left[-\frac{2t^2}{\tau_p^2}\right]. \quad (3.48)$$

Hierbei gibt  $n_2$  den nichtlinearen Brechungsindex,  $k$  den Wellenvektor und  $\tau_p$  die Pulslänge an. In Abbildung 3.10 a) ist dieser Effekt graphisch dargestellt. Es ist zu erkennen, dass der zeitlich vordere Teil des Gaußpulses rotverstimmt ist, während die linke, zeitlich spätere Flanke blauverstimmt ist, also höherfrequente Anteile enthält.



**Abbildung 3.10:** Abbildung a) zeigt, dass durch die Selbstphasenmodulation die Laserfrequenz zeitlich moduliert wird. Nach der Propagation durch das Medium ist der zeitlich vordere Teil des Gaußpulses rotverstimmt. Die zeitlich spätere Flanke ist hingegen blauverstimmt. Abbildung b) zeigt die durch den Kerr-Effekt verursachte Krümmung der Phasenfront.

Durch diese sogenannte *Selbst-Phasen-Modulation* erhält der Puls also neue Frequenzkomponenten. Dieses spektrale Auffächern des Laserpulses wird als *chirp* bezeichnet. Durch Interferenz der neuen kohärenten Frequenzkomponenten mit dem ursprünglichen Puls kann es zu einer Pulsverkürzung kommen, da die Interferenz im Zentrum zwar konstruktiv ist, an den Flanken aber destruktiv. Dieser Effekt der Pulsverkürzung wird zum Beispiel bei dem Modenkopplungsverfahren **APM** (engl. *additive-puls mode locking*) ausgenutzt [30, 74].

Genau wie auf das zeitliche Profil wirkt sich der Kerr-Effekt auch auf das räumliche Profil aus. Liegt ein Puls mit räumlichem Gaußprofil

$$I_{sp} = I_0 \exp\left[-2\frac{r^2}{\omega_0^2}\right] \quad (3.49)$$

vor, folgt für die Phase an der radialen Position  $r$

$$\phi_{sp}(r) = n_2 k d I(r) = n_2 k d I_0 \exp\left[-2\frac{r^2}{\omega_0^2}\right] \approx n_2 k d I_0 \left(1 - \frac{2r^2}{\omega_0^2}\right), \quad (3.50)$$

wobei im letzten Schritt durch die ersten beiden Terme der Taylorreihe  $\exp[-2r^2/\omega_0^2] \approx (1 - 2r^2/\omega_0^2)$  genähert wurde. Wie der graphischen Darstellung dieses Zusammenhangs in Abbildung 3.10 b) zu entnehmen ist, kommt es zu einer Verformung der Phasenfront. Durch diese quadratische Verformung in radialer Richtung wird der mittlere, intensive Teil des räumlichen Strahlprofils gegen die äußeren,



weniger intensiven Strahlflanken verzögert. Diese Form der Wellenfront ist von fokussierenden Linsen bekannt. Die Brennweite einer solchen Selbst-Fokussierung kann angegeben werden durch [30]

$$f_{\text{sf}} = -\frac{dr}{d\phi_{\text{sp}}} = \frac{\omega_0^2}{4n_2 d I_0}. \quad (3.51)$$

### 3.2.3 Dispersion

Durch die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex kommt es zu unterschiedlichen Geschwindigkeiten der Frequenzanteile eines breitbandigen, kurzen Laserpulses. Dies führt zu einer zeitlichen Streckung des Pulses.

Ein Lichtpuls mit der Fourier-Transformation des elektrischen Feldes

$$E_0(\omega) = \exp\left(\frac{-(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma}\right), \quad (3.52)$$

wobei  $\Gamma$  einen Formfaktor der Gaußform darstellt, hat nach der Propagation durch ein Medium der Dicke  $L$  das Spektrum

$$E(\omega, x) = E_0(\omega) \exp[-ik(\omega)L] \quad \text{mit} \quad k(\omega) = \frac{n\omega}{c}. \quad (3.53)$$

Der Wellenvektor  $k(\omega)$  ist hier abhängig vom Brechungsindex des Mediums. Für kurze Pulse, bei denen  $\Delta\omega \ll \omega_0$  gilt, kann dieser durch eine Taylorreihe genähert werden

$$k(\omega) = k(\omega_0) + k'(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k''(\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (3.54)$$

mit

$$k' = \left(\frac{d}{d\omega}k(\omega)\right)\Big|_{\omega_0} \quad \text{und} \quad k'' = \left(\frac{d^2}{d\omega^2}k(\omega)\right)\Big|_{\omega_0}. \quad (3.55)$$

Wird dies in Gleichung (3.53) eingesetzt und die inverse Fourier Transformation  $\epsilon(t, x)$  gebildet, erhält man [73]

$$\epsilon(t, x) = \sqrt{\frac{\Gamma(x)}{\pi}} \cdot \exp\left[i\omega_0\left(t - \frac{x}{v_\phi(\omega_0)}\right)\right] \cdot \exp\left[-\Gamma(x)\left(t - \frac{x}{v_g(\omega_0)}\right)^2\right] \quad (3.56)$$

mit

$$v_\phi(\omega_0) = \left(\frac{\omega}{k}\right)\Big|_{\omega_0}, \quad v_g(\omega_0) = \left(\frac{d\omega}{dk}\right)\Big|_{\omega_0}, \quad \frac{1}{\Gamma(x)} = \frac{1}{\Gamma} + 2ik''L. \quad (3.57)$$

Der erste Exponentialterm in Gleichung (3.56) zeigt, dass die Phase der Zentralfrequenz  $\omega_0$  nach der Strecke  $L$  um den Betrag  $x/v_\phi$  verzögert wurde. Dies hat allerdings keine messbaren Auswirkungen auf den Puls. Die sogenannte *Phasengeschwindigkeit*  $v_\phi$  gibt die Propagationsgeschwindigkeit der ebenen Wellenfronten eines Pulses im Medium wieder. Die *Gruppengeschwindigkeit*  $v_g$  hingegen steht für die Geschwindigkeit mit der sich die Einhüllende des Pulses im Medium bewegt. Es gilt daher immer  $v_g < v_\phi$ . Der zweite Term in Gleichung (3.56) zeigt, dass der Puls nach Propagation der Strecke  $L$  durch das Medium immer noch eine Gaußform hat, jedoch um  $L/v_g$  verzögert wurde.

Einsetzen von  $k = 2\pi/\lambda$  für den Wellenvektor, sowie  $c = n(\omega)\omega\lambda/2\pi$  für die Lichtgeschwindigkeit in Vakuum in Gleichung (3.57), führt zur allgemein bekannten Beziehungen

$$v_\phi = \frac{c}{n(\omega)} \quad (3.58)$$

$$v_g = \frac{d\omega}{dk}, \quad \frac{dk}{d\omega} = \frac{1}{c} \left( n(\omega) + \omega \frac{dn(\omega)}{d\omega} \right) \quad (3.59)$$

$$v_g \approx v_\phi \left( 1 - \frac{\omega}{n(\omega)} \frac{dn(\omega)}{d\omega} \right). \quad (3.60)$$

Aus Gleichung (3.55) und (3.57) kann die Gleichung zur *Gruppen-Geschwindigkeits-Dispersion* (engl. *group-velocity-dispersion*, **GVD**) hergeleitet werden

$$k'' = \left( \frac{d^2k}{d\omega^2} \right) \Big|_{\omega_0} = \frac{d}{d\omega} \left( \frac{1}{v_g(\omega)} \right) \Big|_{\omega_0}. \quad (3.61)$$

Die Phase eines Pulses, der durch ein Medium mit nichtlinearem Brechungsindex  $n_2$  der Dicke  $L$  propagiert, kann angegeben werden als

$$\phi(\omega) = k(\omega)L = \frac{n(\omega)\omega L}{c}. \quad (3.62)$$

Dabei ist  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $k$  der Wellenvektor [30, 72]. Aus der ersten Ableitung dieser Phase nach  $\omega$  ergibt sich die *Gruppenverzögerung*  $T_g$

$$\phi' = \frac{d\phi(\omega)}{d\omega} = \frac{d}{d\omega} kL = L \left( \frac{dk}{d\omega} \right)^{-1} = \frac{L}{v_g} = T_g. \quad (3.63)$$

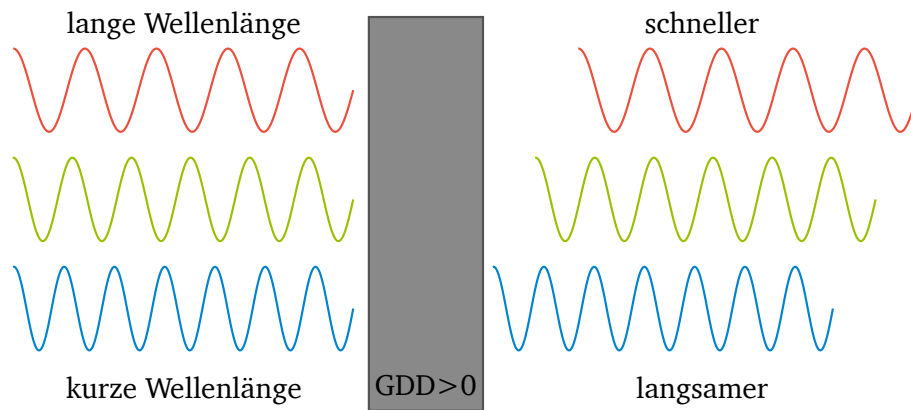
Mit Gleichung (3.59) ergibt sich daraus

$$T_g = \frac{L}{c} \left( n + \omega \frac{dn}{d\omega} \right) = \frac{L}{c} \left( n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} \right). \quad (3.64)$$

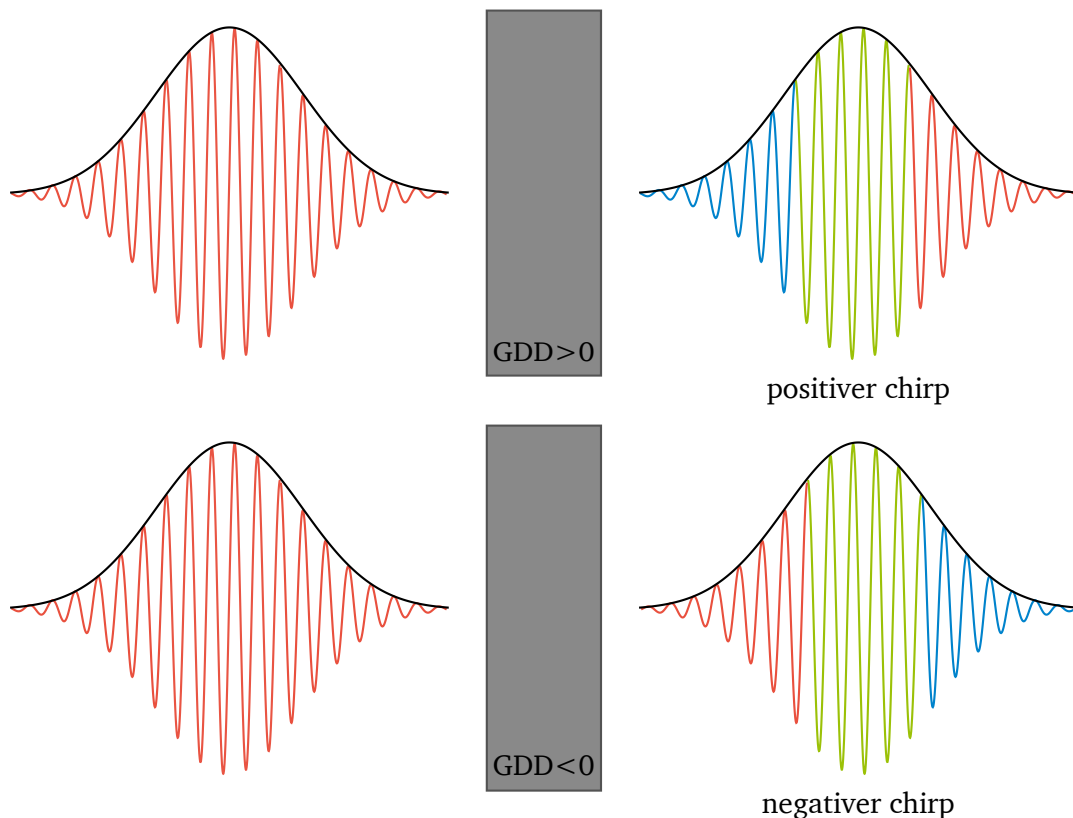
Die Gruppenverzögerung  $T_g$  gibt die Verzögerung des Zentrums der Einhüllenden des Pulses im Medium an. Da verschiedene Gruppen der quasimonochromatischen Welle mit unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten durch das Medium laufen, kommt es zu einer Verbreiterung des Pulses, der sogenannten *Gruppenverzögerungs-Dispersion* (engl. *group-delay-dispersion*, **GDD**). Diese resultiert aus der zweiten Ableitung von  $\phi$ , gemäß

$$\text{GDD} = \phi'' = \frac{L}{c} \left( 2 \frac{dn}{d\omega} + \omega \frac{d^2n}{d\omega^2} \right) = \frac{L\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2n}{d\lambda^2}. \quad (3.65)$$

Die Gruppenverzögerungs-Dispersion zieht eine zeitliche Streckung des Laserpulses nach sich. Abhängig vom Vorzeichen der **GDD** eilen die langen den kurzen Wellenlängen voraus ( $\text{GDD} > 0$ ) und man spricht von einem positiven chirp, oder die kurzen, „blauen“ Wellenlängen eilen voraus ( $\text{GDD} < 0$ ) und man spricht von einem negativen chirp. Dieser Zusammenhang ist in den Abbildungen 3.11 und 3.12 dargestellt.



**Abbildung 3.11:** Die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex verursacht die Gruppenverzögerungs-Dispersion (**GDD**). Ist die **GDD** positiv eilen, die längeren Wellenlängen den kürzeren voraus. Graphik in Anlehnung an [30].



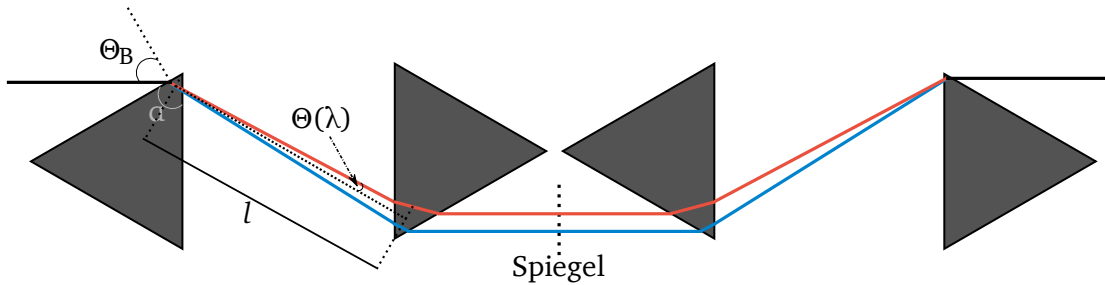
**Abbildung 3.12:** Die **GDD** verursacht eine zeitliche Streckung des Laserpulses. Bei positiver **GDD** eilen die langen den kurzen Wellenlängen voraus (positiver chirp), bei negativer **GDD** vice versa (negativer chirp). Graphik in Anlehnung an [30].

### 3.2.4 Optische Kompression

In Abschnitt 3.2.3 wurde gezeigt, wie sich die Dispersion auf die Pulslänge kurzer Laserpulse auswirken kann. Die meisten transmissiven optischen Elemente weisen eine positive Dispersion auf, so dass sich dieser Effekt über mehrere Optiken aufsummiert. Um der resultierenden Pulslängenänderung entgegenzuwirken, wird ein optisches Element, respektive ein Verfahren, zur gezielten Erzeugung negativer

Dispersion benötigt. Mithilfe eines solchen Verfahrens ist es möglich, zeitlich gestreckte Pulse wieder zu komprimieren. Man spricht daher von einem *Pulskompressor*. Es gibt verschiedene Möglichkeiten, einen Puls zu komprimieren. Neben Techniken, die den Kerr-Effekt ausnutzen, sind die Techniken, die sich der Winkeldispersion bedienen, bei der Arbeit mit Ultrakurzpuls-Lasern wohl am weitesten verbreitet. Dazu gehören die Kompression mit Gittern als auch die mit Prismen oder Kombinationen aus beidem. Im Experiment zur vorliegenden Arbeit kam ein Prismenkompressor zum Einsatz, so dass im Folgenden dieser als Beispiel zur Darstellung des Verfahrens herangezogen wird.

Um die Verluste durch Reflexion am ersten Übergang von Luft in das Prisma zu minimieren, werden die Prismen häufig im Brewsterwinkel angeordnet. Der Winkel zwischen Lot und einfallendem Strahl wird als  $\Theta_B$  bezeichnet. Der Durchlauf durch ein Prisma führt zur Auffächerung des Strahls durch frequenzabhängige Austrittswinkel des Lichtes auf der Prismenrückseite. Um aus dem aufgefächerten Licht erneut ein Bündel paralleler Lichtstrahlen zu formen, wird ein zweites Prisma genutzt. Der Abstand dieser Prismen, gemessen von Apex zu Apex, ist gegeben durch die Länge  $l$ . Durchläuft das Licht zwei weitere Prismen in gespiegelter Anordnung, so liegen die zuvor noch aufgespaltenen Frequenzen des Laserpulses wieder räumlich übereinander. Statt vier Prismen, wie in Abbildung 3.13 gezeigt, ist es möglich, die ersten beiden in Doppelpass-Konfiguration zu betreiben. Die gestrichelte Linie in Abbildung 3.13 gibt hierzu die Position eines Spiegels wieder.



**Abbildung 3.13:** Schematischer Aufbau eines Prismenkompressors. Der Eingangsstrahl trifft das Prisma im Brewsterwinkel, um Reflexionen zu minimieren. Aus gleichem Grund entspricht der Apexwinkel  $\alpha$  der Prismen häufig ebenfalls dem Brewsterwinkel.  $\Theta(\lambda)$  gibt den Austrittswinkel für Licht der Frequenz  $\omega$  im Vergleich zur Zentralfrequenz  $\omega_0$  an. Die ersten beiden Prismen stehen im Abstand  $l$  zueinander. Um die spektrale Auffächerung nach dem ersten Prismenpaar zu kompensieren, wird ein zweites Paar in gespiegelter Anordnung benötigt. Alternativ kann das erste Prismenpaar in Doppelpass-Konfiguration benutzt werden, indem ein Spiegel an der Position der gestrichelten Linie positioniert wird.

Bei der Betrachtung der spektralen Phase aus Gleichung (3.62) muss darauf geachtet werden, die für das verwendete optische Element korrekte optische Pfadlänge zu verwenden. Für ein Prisma gilt [72, 75]

$$\phi(\omega) = \frac{\omega}{c} n(\omega) L_{\text{op}}(\lambda) \quad \text{mit} \quad L_{\text{op}}(\lambda) = l \cos[\Theta(\lambda)]. \quad (3.66)$$

Hierbei gibt  $\Theta(\lambda)$  den Austrittswinkel für Licht der Frequenz  $\omega$  im Vergleich zur Zentralfrequenz  $\omega_0$  an [72]. Für die **GDD** der Prismen ergibt sich daraus

$$\text{GDD}_{\text{Prism}} = \frac{\lambda^3}{2\pi c} \frac{d^2}{d\lambda^2} n(\lambda) L_{\text{op}}(\lambda). \quad (3.67)$$

Die enthaltene Ableitung der letzten Gleichung führt zu

$$\frac{d^2}{d\lambda^2} n L_{\text{op}} = l \cos[\Theta] \frac{d^2 n}{d\lambda^2} - 2l \sin[\Theta] \left( \frac{dn}{d\lambda} \right) \left( \frac{d\Theta}{d\lambda} \right) - nl \cos[\Theta] \left( \frac{d\Theta}{d\lambda} \right)^2 - nl \sin[\Theta] \frac{d^2 \Theta}{d\lambda^2}, \quad (3.68)$$

wobei für  $n = n(\lambda)$  und  $\Theta = \Theta(\lambda)$  gilt. Da Gleichung (3.68) für alle vorkommenden  $\Theta$  gilt, wird für die weitere, detailliertere Betrachtung  $\Theta = 0$  gewählt,

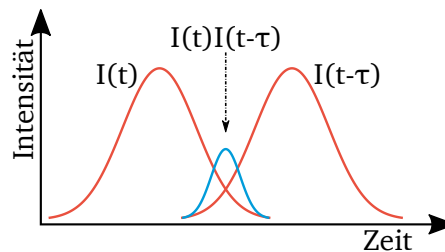
$$\left. \frac{d^2}{d\lambda^2} n L_{\text{op}} \right|_{\Theta=0} = l \left( \frac{d^2}{d\lambda^2} n - n \left( \frac{d}{d\lambda} \Theta \right)^2 \right). \quad (3.69)$$

Der zweite Term in Gleichung (3.69) ist immer negativ. Dieser Beitrag der Winkeldispersion ist unabhängig vom verwendeten Material und zeigt, dass eine geeignete Anordnung winkeldispersiver Elemente eine insgesamt negative **GDD** aufweisen kann.

### 3.2.5 Messung ultrakurzer Laserpulse – Intensitäts-Autokorrelation

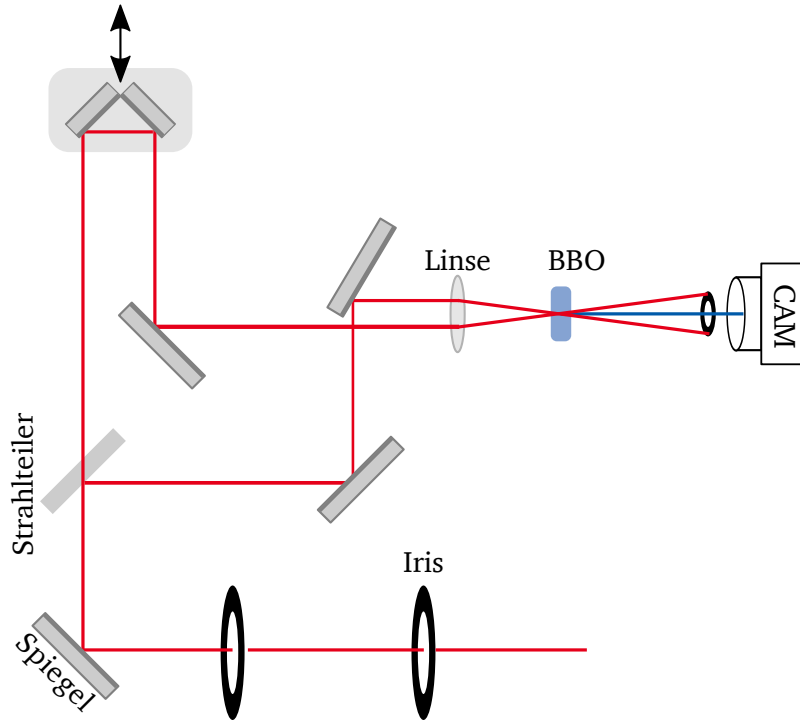
Gerade bei Anwendungen im Bereich der nichtlinearen Optik spielt die Pulsdauer eine außerordentlich große Rolle. Um den zeitlichen Verlauf eines Pulses zu bestimmen, muss dieser mit einem geeigneten Detektor erfasst bzw. abgetastet werden. Das so aufgenommene Signal  $S(t)$  eines zeitlichen Verlaufs ist immer eine Faltung, respektive eine Korrelation von  $S(t)$  mit der Antwortfunktion des verwendeten Detektors. Nur unter der Annahme eines idealen Detektors mit Deltafunktion als Antwortfunktion, stimmt das gemessene Zeitprofil exakt mit dem realen Puls überein. Da die Antwortfunktion realer Detektoren immer von der Deltafunktion abweicht, muss darauf geachtet werden, dass die Zeitkonstante der Messung kleiner als die des zu messenden Signals ist. Schnelle opto-elektronische Detektoren besitzen typischerweise Zeitkonstanten von mehreren 10 ps. Bei der Messung eines Pulses von 100 fs wird in Folge dessen lediglich die Detektorantwort wiedergegeben.

Ein Ereignis, das kurz genug ist, um den Puls abzutasten, ist der Puls selbst. Bei der *Autokorrelation* wird eine Korrelation des Pulses mit sich selbst durchgeführt. Dazu wird der Lichtstrahl in zwei Teilstrahlen aufgesplittet. Einer der beiden Teilstrahlen läuft über eine variable Verzögerungsstrecke, bevor beide Strahlen überkreuzt werden. Da die Messung mit unterschiedlichen Verzögerungen  $\tau$  durchgeführt werden, spricht man von einem *Scanning-Autokorrelator*. Da zwei kreuzende Lichtstrahlen keinerlei Interaktion miteinander zeigen, kommt an dieser Stelle ein nichtlineares Medium zum Einsatz. Dies kann ein Kristall mit ausreichend hoher Konversionseffizienz für nicht lineare Prozesse sein, aber auch mithilfe der Zwei-Photonen-Absorption in einer Zwei-Photonen-Photodiode realisiert werden. Bei der Autokorrelation von Laserstrahlung eines Titan:Saphir Lasers wird oft ein **BBO**-Kristall ( $\beta - \text{BaB}_2\text{O}_4$ , *Beta-Bariumborat*) benutzt. Im Überlappbereich der beiden Strahlen im Kristall wird Licht der doppelten Frequenz durch den Prozess der **SHG** (siehe Unterkapitel 3.1) erzeugt. Die Entstehung frequenzkonvertierten Lichtes ist in Abbildung 3.14 illustriert.



**Abbildung 3.14:** Durch die Überlappung der zeitlich zueinander verzögerten Teilstrahlen im Kristall entsteht frequenzkonvertiertes Licht der zweiten Harmonischen.

Laufen die Strahlen nicht kollinear durch den Kristall, sondern unter einem Winkel, so kommt es hinter dem Kristall zur Trennung zwischen Elementarstrahlung und Signal, da das Signal entlang der Winkelhalbierenden der beiden Erzeugerstrahlen läuft. Diese Konfiguration entspricht einem sogenannten *untergrundfreien Autokorrelator*. Das Prinzip dieses Aufbaus ist in Abbildung 3.15 dargestellt.



**Abbildung 3.15:** Schematischer Aufbau eines hintergrundfreien Intensitäts-Autokorrelators. Die beiden Irisblenden dienen als Orientierung beim Einfädeln des Strahls in den Autokorrelator. Der Strahlteiler teilt den Laserstrahl in zwei Anteile gleicher Leistung. Mithilfe eines beweglichen Spiegelpaares kann die Weglänge einer der Strahlen verändert werden. Sowohl der verzögerte, als auch der nicht verzögerte Strahl werden von einer Linse in einen BBO-Kristall fokussiert, wo sie sich überlappen. Das im Überlappungsbereich erzeugte, frequenzverdoppelte Licht wird von einer Kamera detektiert.

Für das elektrische Feld der erzeugten Strahlung gilt

$$E_{\text{sig}}^{\text{SHG}} \propto E(t)E(t - \tau), \quad (3.70)$$

wobei  $E(t)$  das elektrische Feld der Primärstrahlung und  $\tau$  die Verzögerung des einen Teilstrahls repräsentieren. Aus diesem Zusammenhang ergibt sich eine Relation für die Intensität der Signalstrahlung

$$I_{\text{sig}}^{\text{SHG}} \propto I(t)I(t - \tau). \quad (3.71)$$

Da die verwendeten Detektoren zu langsam sind, um diese Signalstrahlung zeitlich aufzulösen, ergibt sich die sogenannte Autokorrelationsspur aus der Integration über diese Intensität

$$S^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau)dt. \quad (3.72)$$

Das Superskript (2) in Gleichung (3.72) zeigt an, dass es sich um eine Autokorrelationsspur der zweiten Ordnung handelt, das heißt die Erzeugung der zweiten Harmonischen wird zur Detektion genutzt. Es ist auch möglich, eine Autokorrelation mit Licht der dritten Harmonischen durch zu führen.

Die zu messende Pulsdauer  $\Delta t$  steht in direktem Zusammenhang mit der Halbwertsbreite der aufgenommenen Autokorrelationsspur  $S_{\text{FWHM}}^{(2)}$ . Aus der Fourier-Transformation des Signals ergibt sich allerdings noch ein Skalierungsfaktor. Für einen gaußförmigen Puls gilt [73]:

$$\sqrt{2}\Delta t = \Delta S_{\text{FWHM}}^{(2)}. \quad (3.73)$$

Dieser Skalierungsfaktor hängt von der Funktion ab, die an die Messdaten angepasst wird. Einige Skalierungsfaktoren zu gegebenen Funktionen können der Tabelle 3.1 entnommen werden.

Pulsform	Skalierungsfaktor
Gaußfunktion	$\sqrt{2}$
Lorentzfunktion	2
$\text{sech}^2(t)$	1,543

**Tabelle 3.1:** Skalierungsfaktoren zur Berechnung der Pulsbreite aus der Autokorrelationsspur [73, 76].

Zu beachten ist, dass aus der Autokorrelation keine Rückschlüsse auf den Intensitätsverlauf des Pulses gezogen werden können. Dies liegt daran, dass viele verschiedene Intensitätsverläufe zur gleichen Korrelationsspur führen. Ebenfalls kann keine Aussage über die Phase des Lichts getroffen werden [72]. Zur Messung weiterführender Pulseigenschaften reicht ein Autokorrelator nicht aus. Da sie im Rahmen der experimentellen Arbeit keine Anwendung fanden, soll auf Weiterentwicklungen des Autokorrelators, wie das SPIDER Verfahren [77] (engl. *spectral-phase interferometry for direct electric-field reconstruction*) oder den FROG [78] (engl. *frequency-resolved optical gating*), nicht weiter eingegangen werden.

### 3.3 Grundlagen der Zwei-Photonen-Polymerisation

Im Gegensatz zur klassischen Photolithographie, die in Unterkapitel 3.4 beschrieben wird, ist es bei der Zwei-Photonen-Polymerisation möglich, eine dreidimensionale Freiform zu erzeugen. Dies wird erreicht, indem statt einer ausgedehnten UV-Lichtquelle und einer Belichtungsmaske ein fokussierter Laser im Bereich doppelter Wellenlänge, also um 800 nm verwendet wird. Beide Methoden, die Photolithographie und die Zwei-Photonen-Polymerisation, kommen auf einer Probe, bestehend aus Photolack auf einem Trägersubstrat, zur Anwendung. Da nur kleine Flächen bzw. Volumina belichtet werden, kommt ein Negativlack zum Einsatz.

Um mithilfe eines Lasers einer Wellenlänge nahe am infraroten Spektralbereich einen Lack zu belichten, dessen Empfindlichkeit im ultravioletten Spektralbereich liegt, wird der nichtlinear optische Effekt der Zwei-Photonen-Absorption, der in Abschnitt 3.3.1 beschrieben wird, genutzt. Die chemischen Prozesse, die daraufhin zur Polymerisation des Lackes führen, bleiben gleich.

Um nun eine 3D-Form zu belichten, wird der Laserfokus durch die Probe bewegt und dieser Punkt für Punkt belichtet. Die so nacheinander belichteten Volumen-Pixel werden kurz **Voxel** (vom engl. *volumetric pixel*) genannt.

#### 3.3.1 Zwei-Photonen-Absorption

Die Zwei-Photonen-Absorption wurde das erste Mal von M. Göppert-Mayer im Jahr 1931 in ihrer Dissertation [19] theoretisch beschrieben. Erst 30 Jahre später konnten W. Kaiser und C. G. B. Garrett dieses Phänomen experimentell nachweisen [79].

Bei der Zwei-Photonen-Absorption wird ein Atom oder Molekül angeregt, indem zwei Photonen simultan absorbiert werden. Es ist hierbei nicht notwendig, dass ein entsprechendes Zwischenniveau existiert. Für die Absorption gilt die Energie-Zeit-Unschärferelation. Simultan heißt hier, dass ein zweites Photon

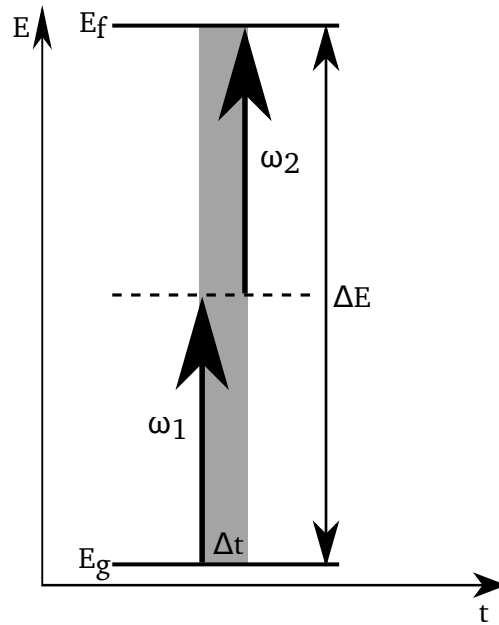
innerhalb der Dauer  $\Delta t$  des Absorptionszeitraums des ersten Photons bereitgestellt wird. Dies entspricht typischerweise einem Zeitraum von  $10^{-15}$  s [80].

Der Energieübertrag  $\Delta E$  entspricht der Summe der einzelnen Photonenenergien

$$\Delta E = \hbar(\omega_1 + \omega_2). \quad (3.74)$$

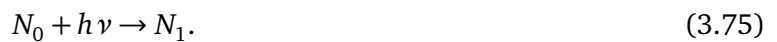
Dieser Vorgang ist in Abbildung 3.16 schematisch dargestellt.

Man unterscheidet prinzipiell zwischen entarteter und nicht-entarteter Zwei-Photonen-Absorption. Entartung liegt vor, wenn die beiden beteiligten Photonen die gleiche Energie liefern, der Prozess also „einfarbig“ ist [81].



**Abbildung 3.16:** Anregung vom Grundzustand  $E_g$  in den angeregten Zustand  $E_f$  durch Zwei-Photonen-Absorption. Das zweite Photon  $\omega_2$  muss innerhalb der Absorptionsdauer  $\Delta t$  des ersten Photons  $\omega_1$  eintreffen.

Neben einer quantenmechanischen Herleitung, wie sie zum Beispiel bei M. Göppert-Mayer [19] und W. Bischel [82] zu finden ist, können die Eigenschaften der Zwei-Photonen-Übergangswahrscheinlichkeit anschaulich in Form von Ratengleichungen dargestellt werden. Die folgende Herleitung orientiert sich an der Beschreibung von W. Fisher [83]. Die Ratengleichung der photochemischen Reaktion der Ein-Photonen-Absorption lautet demnach



Hier verkörpert  $N_0$  ein Molekül im Grundzustand und  $N_1$  ein Molekül im angeregten Zustand, nachdem es ein Photon der Energie  $h\nu$  absorbiert hat. Die Wahrscheinlichkeit, dass das Molekül durch eine Ein-Photonen-Absorption in den angeregten Zustand gelangt, kann ausgedrückt werden durch

$$\frac{d[N_1]}{dt} = k[N_0][h\nu]. \quad (3.76)$$

Während  $k$  einen Koeffizienten der Reaktionsrate ( $\text{cm}^6\text{s}^{-1}\text{Photon}^{-2}$ ) darstellt, sind  $[N_0]$ ,  $[N_1]$  und  $[h\nu]$  die Anzahldichten ( $\text{cm}^{-3}$ ) der Moleküle im Grundzustand, im angeregten Zustand und der anregenden Photonen. Da die Photonenkonzentration  $[h\nu]$  über den Photonenfluss  $F = [h\nu]c = \frac{I}{E} = \frac{I}{h\nu}$  [84],



abhängig von Photonenenergie  $E$  und Intensität  $I$ , ausgedrückt werden kann, wird deutlich, dass die Ein-Photonen-Absorption linear von der Laserintensität  $I$  abhängt.

Für die Ratengleichung der Zwei-Photonen-Absorption gilt

$$N_0 + 2h\nu \rightarrow N_1. \quad (3.77)$$

Die Wahrscheinlichkeit für einen solchen Prozess kann entsprechend bestimmt werden [83] über

$$\frac{d[N_1]}{dt} = k[N_0][h\nu]^2. \quad (3.78)$$

Da für die Anregung jedes Moleküls zwei Photonen absorbiert werden müssen, ist es sinnvoll Gleichung (3.78) in Abhängigkeit der Rate der Photonendichte

$$\frac{d[h\nu]}{dt} = \frac{-2d[N_1]}{dt} \quad (3.79)$$

anzugeben:

$$\frac{d[h\nu]}{dt} = -2d[N_1][h\nu]^2. \quad (3.80)$$

Mithilfe der Relation  $c = dx/dt$  kann Gleichung (3.80) umgeschrieben werden zu

$$\frac{d[h\nu]}{[h\nu]^2} = -\frac{2k}{c}[N_0]dx. \quad (3.81)$$

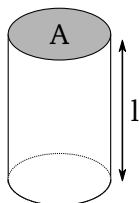
Unter der Annahme, dass keine Sättigung vorliegt, also der Grundzustand  $N_0$  nicht leer ist, kann Gleichung (3.81) in den Grenzen von  $x = 0$  bis  $x = l$  integriert werden. Hierbei ist  $l$  die Interaktionslänge des Lasers mit der Materie. Durch Umstellen der integrierten Gleichung folgt

$$[h\nu(0, t)] - [h\nu(l, t)] = \frac{2kl}{c}[N_0][h\nu(0, t)]^2. \quad (3.82)$$

Durch die Multiplikation beider Seiten mit  $c$  und Erweitern mit  $c^2/c^2$  erhält man einen intensitätsabhängigen Ausdruck mit der Einheit (Photon  $s^{-1}cm^{-1}$ ):

$$I(0, t) - I(l, t) = \frac{2kl}{c^2}[N_0]I(0, t)^2. \quad (3.83)$$

Um eine Abhängigkeit von der Photonen-Absorptionsrate  $R_{Ab}$  mit der Einheit (Photon  $s^{-1}$ ) zu erhalten werden beide Seiten der Gleichung (3.83) mit der Wechselwirkungs-Querschnittsfläche  $A$  des Lasers mit der Materie multipliziert. Die Wechselwirkungs-Querschnittsfläche  $A$  bildet gemeinsam mit der Interaktionslänge  $l$  das gesamte Interaktionsvolumen des Lasers ab. Dieses Volumen ist schematisch in Abbildung 3.17 dargestellt.



**Abbildung 3.17:** Schematische Darstellung des Wechselwirkungsvolumens der Zwei-Photonen-Absorption.

Im gleichen Schritt wird die Photonenkonzentration durch die Laserleistung in (Photon  $\text{s}^{-1}$ ) ausgedrückt. Es gilt:

$$R_{\text{Ab}} = \frac{2kl}{c^2} [N_0] P(0, t)^2. \quad (3.84)$$

Durch einführen des Zwei-Photonen-Wechselwirkungsquerschnitts  $\sigma_{\text{TPA}} = 2k/c$  mit der Einheit ( $\text{cm}^4 \text{s Photon}^{-1} \text{Molekül}^{-1}$ ) und Umformen der Teilchenzahldichte in eine Molekkonzentration  $C = N_0/N_A$  mit der Avogadro-Zahl  $N_A$  kann Gleichung (3.84) reduziert werden auf

$$R_{\text{Ab}} = \sigma_{\text{TPA}} \frac{l}{A} C P(0, t)^2. \quad (3.85)$$

Da für jede Anregung zwei Photonen absorbiert werden, entspricht die Rate mit der der angeregte Zustand besetzt wird der halben Photonenabsorptionsrate. Für die Rate der Zwei-Photonen-Anregung folgt entsprechend:

$$R_{\text{TPE}} = \frac{\sigma_{\text{TPA}}}{2} \frac{l}{A} C P(0, t)^2. \quad (3.86)$$

Die Angabe der Laserleistung  $P$  ist nur im Fall eines **CW-Lasers** (engl. *continuous wave*, Dauerstrich-Laser) valide. Im Fall eines gepulsten Lasers, wie er im Experiment dieser Arbeit Anwendung findet, setzt sich das Quadrat der Laserleistung aus dem Produkt der mittleren und maximalen Laserleistung  $P^2 = P_{\text{peak}} \cdot P_{\text{ave}}$  [83] zusammen. Für die mittlere Laserleistung  $P_{\text{ave}}$  gilt

$$P_{\text{ave}} = P_{\text{peak}} \cdot \tau \cdot \nu_{\text{rep}}, \quad (3.87)$$

wobei  $\tau$  die Pulslänge der Laserpulse und  $\nu_{\text{rep}}$  die Wiederholrate des Lasers angibt. Durch Einsetzen dieser Beziehungen kann Gleichung (3.86) umgeschrieben werden zu

$$R_{\text{TPE}} = \frac{\sigma_{\text{TPA}}}{2} \frac{l}{A} P_{\text{peak}} \cdot P_{\text{ave}} = \frac{\sigma_{\text{TPA}}}{2} \frac{l}{A} P_{\text{peak}}^2 \tau \nu_{\text{rep}}. \quad (3.88)$$

Diese einfache Beschreibung zeigt anschaulich die Abhängigkeiten der Zwei-Photonen-Absorption, welche linear von dem beleuchteten Volumen, dem Wechselwirkungsquerschnitt, der Pulsdauer sowie der Wiederholrate abhängt. Die maximale Laserleistung hingegen geht quadratisch in die Beziehung ein. Aufgrund dieser Zusammenhänge findet bei der Zwei-Photonen-Polymerisation eine stark fokussierter, gepulster Laser kurzer Pulsdauer Anwendung.

---

### 3.3.2 Wirkungsquerschnitt der Zwei-Photonen-Absorption

---

Der Energieverlust durch die Zwei-Photonen-Absorption kann nach K. Lee [85] dargestellt werden als

$$\frac{d}{dt} W = \frac{8\pi^2 \omega}{n^2 c^2} I^2 \Im(\chi^{(3)}). \quad (3.89)$$

Hierbei steht  $n$  für den Brechungsindex,  $\omega$  für die optische Frequenz des einfallenden Lichts der Intensität  $I$  und  $\Im(\chi^{(3)})$  für den Imaginärteil der Suszeptibilität dritter Ordnung. So wie der Imaginärteil des linearen Brechungsindex für die lineare Absorption verantwortlich ist, so ist der Imaginärteil der Suszeptibilität dritter Ordnung  $\Im(\chi^{(3)})$  ein Maß für die Zwei-Photonen-Absorption.

Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\text{TPA}}$  ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass ein Molekül zwei Photonen simultan absorbiert. Unter Zuhilfenahme des Photonenflusses  $F = I(t)/\hbar\omega$  kann der Wirkungsquerschnitt dargestellt werden als [85]

$$\sigma_{\text{TPA}} = \frac{1}{N_g F^2} \frac{d}{dt} n_{\text{Photon}}. \quad (3.90)$$

Hierbei ist  $dn_{\text{Photon}}/dt$  die Anzahl an Photonen, die pro Zeiteinheit absorbiert wird,  $N_g$  ist die Dichte der Moleküle im Grundzustand, welche für eine Absorption zur Verfügung stehen und  $I$  gibt die Intensität des Lichtes mit der Frequenz  $\omega$  in Einheiten der Energie pro Zeit und Fläche an.

Unter der Annahme einer monochromatischen elektromagnetischen Welle, ist die Photonenenergie  $E_{\text{Photon}} = \hbar\omega$  stets konstant. Der Energieverlust in Einheiten von Photonenenergien entspricht somit der Anzahl absorbierter Photonen und es gilt:

$$\frac{d}{dt} W = \frac{d}{dt} n_{\text{Photonen}} \cdot \hbar\omega. \quad (3.91)$$

Gleichsetzen von Gleichung (3.89) und Gleichung (3.90) [85] führt zu einem Ausdruck für den Wirkungsquerschnitt abhängig von  $\chi^{(3)}$ :

$$\sigma_{\text{TPA}} = \frac{1}{N_g} \frac{8\pi^2 \hbar \omega^2}{n^2 c^2} \Im(\chi^{(3)}). \quad (3.92)$$

Dieser materialspezifische Wirkungsquerschnitt wird häufig in der Einheit *Göppert-Mayer*, kurz **GM**, angegeben. Die Einheit wurde nach der Entdeckerin der Zwei-Photonen-Absorption, Maria Göppert-Mayer, benannt, entspricht

$$1 \text{ GM} = 10^{-50} \text{ cm}^4 \text{ s Photon}^{-1} \text{ Molekül}^{-1} \quad (3.93)$$

und besagt, dass bei einem Photonenfluss von einem Photon pro Sekunde und pro Quadratcentimeter in einem Material mit einer Dichte von einem Molekül pro Kubikcentimeter auf einer Strecke von einem Zentimeter eins von  $10^{50}$  Photonen absorbiert wird.

### 3.3.3 Voxelgröße

Entscheidend für die Auflösung bei der Anwendung der Zwei-Photonen-Polymerisation ist die Größe der Voxel, also das kleinste bearbeitbare Volumen. Die folgende Beschreibung beruht auf der Annahme, dass der Laserstrahl durch ein Objektiv fokussiert wird und sich in Richtung der z-Achse ausbreitet.

Die Intensitätsverteilung in der Fokusebene eines gaußförmigen Laserstrahls ist

$$I(r, 0) = I_0 \exp\left(\frac{-2r^2}{w_0^2}\right). \quad (3.94)$$

Hierbei sind  $r_0$  der Strahlradius,  $I_0$  die Strahlintensität des einfallenden Strahls und  $w_0$  die Strahltaile in der Fokusebene. Bei gegebener Laserleistung  $P$  kann der Intensitätsverlauf entlang der optischen Achse bestimmt werden zu [80]

$$I(r_z, z) = \frac{2P}{\pi w(z)^2} \exp\left(\frac{-2r_z^2}{w(z)^2}\right), \quad (3.95)$$

mit

$$w(z) = \frac{\lambda}{\pi \tan[\sin^{-1}[\text{NA}/n]]} \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (3.96)$$

Hierbei ist die Koordinate entlang der transversal Achse  $r_z$ ,  $w(z)$  der Radius des fokussierten Strahls entlang der optischen Achse,  $\lambda$  die Wellenlänge des verwendeten Lasers,  $n$  der Brechungsindex des umgebenden Mediums und NA die Numerische Apertur des Objektivs.

Nach J. Serbin [86] variiert die Dichte  $\rho$  der Radikale, die beim Polymerisationsprozess mit Femtosekunden-Laserpulsen erzeugt werden, abhängig von dem Quadrat der Laserintensität  $I$ , der primären Initiatorerteilchendichte  $\rho_0$  und dem Zwei-Photonen-Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\text{TPA}}$ , und folgt dabei der Relation

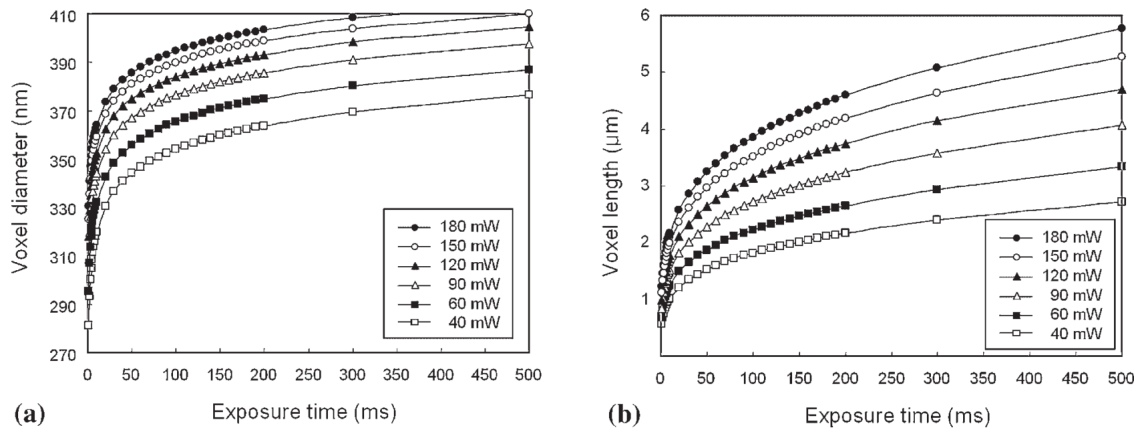
$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = (\rho_0 - \rho) \sigma_{\text{TPA}} I^2. \quad (3.97)$$

Mithilfe der Gleichungen (3.94) bis (3.97) können Ausdrücke sowohl für den Voxel-Durchmesser  $d(P, t, \text{NA})$  als auch für die Voxel-Länge  $l(P, t, \text{NA})$  formuliert werden [80]

$$d(P, t, \text{NA}) = \frac{\lambda}{\pi \tan[\sin^{-1}[\text{NA}/n]]} \left[ \ln \left( \frac{4\pi^2 P^2 t [\tan[\sin^{-1}[\text{NA}/n]]]^4}{E_{\text{th}} \lambda^4} \right) \right]^{1/2}, \quad (3.98)$$

$$l(P, t, \text{NA}) = \frac{2\lambda}{\pi [\tan[\sin^{-1}[\text{NA}/n]]]^2} \left[ \left( \frac{4\pi^2 P^2 t [\tan[\sin^{-1}[\text{NA}/n]]]^4}{E_{\text{th}} \lambda^4} \right)^{1/2} - 1 \right]^{1/2}. \quad (3.99)$$

$E_{\text{th}}$  steht hier für die Schwellenenergie der Polymerisation,  $t$  für die Belichtungszeit. Die Abhängigkeiten der Gleichungen (3.98) und (3.99) sind in den Abbildungen 3.18 a) und b) graphisch dargestellt.



**Abbildung 3.18:** Einfluss der Belichtungszeit und der Laserleistung auf den Voxel-Durchmesser (a) und die Voxel-Länge (b). Siehe auch Abbildung 3.17. Abbildung entnommen aus [80].

Abbildung 3.18 a) zeigt passend zu Gleichung (3.98) die Abhängigkeit des Voxel-Durchmessers (vgl. 3.3.1) von der Belichtungszeit und der verwendeten Laserleistung. Am Verlauf der Messpunkte ist zu erkennen, dass der Voxel-Durchmesser am geringsten ist, wenn wenig Laserleistung und eine geringe Belichtungsdauer verwendet werden. Die Voxel-Länge, welche in Abbildung 3.18 b) gemäß Gleichung (3.99) aufgetragen ist, zeigt eine höhere Sensitivität gegenüber der Laserleistung als gegenüber der Belichtungszeit.

Zusammengefasst kann festgestellt werden, dass ein möglichst kleines Voxel mit einem Aspektverhältnis nahe Eins bei niedriger Laserleistung und geringer Belichtungsdauer generiert werden kann.

---

### 3.4 Grundlagen der Photolithographie

---

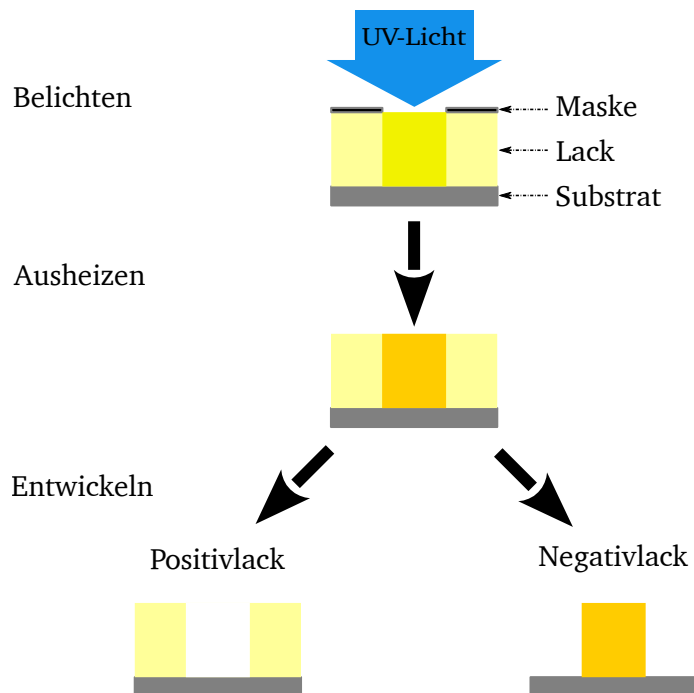
Bei der klassischen Photolithographie wird Photolack (engl. *photoresist*) mithilfe einer ausgedehnten UV-Lichtquelle belichtet. Um eine bestimmte Struktur zu erzeugen, werden Teile der belackten Probe mit einer lichtundurchlässigen Belichtungsmaske abgedeckt. Der Prozess umfasst im Wesentlichen fünf Schritte: Das Aufschleudern von Photolack auf ein Trägersubstrat, das Ausheizen, das Belichten, erneutes Ausheizen und Entwickeln.

---

#### 3.4.1 Präparation der Probe

---

Je nach Lackart, das heißt Positiv- oder Negativlack, werden beim anschließenden Entwickeln die belichteten Teile des Lacks abgetragen (Positivlack) und das auf der Belichtungsmaske abgebildete Muster bleibt als Graben im umgebenden Lack erhalten oder aber die belichteten Bereiche werden für die Entwicklerlösung unlöslich, so dass eine Extrusion des Musters entsteht (Negativlack). Dieses unterschiedliche Verhalten der beiden Hauptlackarten ist in Abbildung 3.19 schematisch dargestellt. In beiden Fällen ist das Resultat eine sogenannte 2,5D-Struktur, also einem 2D-Muster extrudiert in die dritte Dimension.



**Abbildung 3.19:** Schematische Darstellung des unterschiedlichen Verhaltens von Positiv- bzw. Negativlack. Während beim Positivlack belichtete Lackvolumina während des Entwicklungsprozesses entfernt werden, bleiben beim Negativlack gerade diese Strukturen stehen. Lackbereiche, die nicht belichtet werden sollen, werden von einer Belichtungsmaske verdeckt.

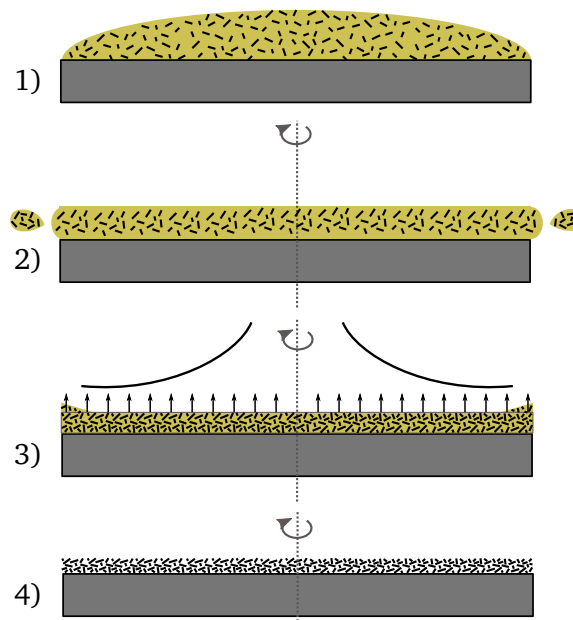
Jeder Photolack besteht aus einem Bindemittel, einem Sensibilisator und einem Lösemittel. Das *Bindemittel*, welches etwa 20 % eines Lacks ausmacht, besteht meist aus Phenolharz/Novolake bzw. Epoxydharz. Der *Sensibilisator*, der etwa 10 % ausmacht, entscheidet maßgeblich darüber, ob ein Positiv- oder ein Negativlack vorliegt. Bei einem Positivlack entsteht durch intensive Bestrahlung eine Karbonsäure

aus den Sensibilisatoren, welche die Löslichkeit des Lacks in Entwicklerflüssigkeit um ein Vielfaches erhöht. Bei Negativlack sorgt der Einfluss von UV-Licht auf den Sensibilisator für eine Quervernetzung, welche die Löslichkeit stark verringert. Die Wahl des Sensibilisators entscheidet außerdem darüber, welcher Wellenlängenbereich die genannten Reaktionen auslöst. Kommerzielle Lacke orientieren sich dabei größtenteils an dem Emissionsspektrum von Quecksilberdampflampen.

Den größten Anteil des Lacks macht mit etwa 70 % das *Lösemittel* aus. Durch den Lösemittelanteil im Lack und der daraus folgenden Viskosität, Oberflächenspannung und Dichte, stellt der Hersteller das Verhalten des Lacks beim Aufschleudern (engl. *spincoating*) ein.

Das Substrat-Material, auf das aufgeschleudert wird, spielt eine eher untergeordnete Rolle. Um eine gleichmäßig dicke Lackschicht zu erhalten, sollte das Substrat möglichst eben sein. Aufgrund dessen, und bedingt durch die häufige Anwendung der Photolithographie in der Halbleitertechnik, haben sich vor allem Silizium-Wafer etabliert. Aber auch Substrate aus Glas, Kunststoff oder Verbundwerkstoffen wie Epoxidharz-Glasfaser-Gemischen sind möglich.

Beim *spincoating* wird ein Trägersubstrat in Rotation versetzt, um den darauf aufgebracht Lack durch die entstehenden Fliehkräfte möglichst gleichmäßig zu verteilen. Typische Umdrehungszahlen liegen hier zwischen einigen 100 und mehreren 1000 Umdrehungen/ min. Um eine optimale Verteilung des Lacks zu erhalten, wird meist ein Programm aus mehreren Sequenzen mit unterschiedlicher Drehzahl und Beschleunigung verwendet und dauert typischerweise einige 10 s. Die einzelnen Schritte sind in Abbildung 3.20 schematisch dargestellt. Im ersten Teil des Schleuderprozesses soll der Lack möglichst über das gesamte Substrat verteilt werden. In der zweiten Phase wird überschüssiger Lack weggeschleudert und eine gleichmäßige, ebene Lackschicht erzeugt. Die Lackausbeute, also der auf dem Substrat verbleibende Anteil, liegt hierbei im Bereich weniger Prozent. Während der relativ lang andauernden, gleichmäßigen Drehung der dritten Phase verdampft bereits ein Großteil des Lösemittels und der Lack dickt ein. Durch die höhere relative Luftgeschwindigkeit und die damit verbundene schnellere Austrocknung des Lacks am Substratrand kommt es dort zu einer erhöhten Lackschicht. Mithilfe einer letzten Beschleunigungsphase kann dieser sogenannte Randwall verringert werden [87].



**Abbildung 3.20:** Schematischer Ablauf beim Spincoating. Im ersten Schritt wird der Lack über die gesamte Substratfläche verteilt. In der zweiten Phase wird überschüssiger Lack weggeschleudert. Im dritten Prozessschritt dreht sich das Substrat gleichmäßig und ein Großteil des Lösemittels verdampft. In der letzten Phase wird durch eine hohe Rotationsfrequenz der Randwall minimiert.

Durch Variation der Drehzahlen, Drehdauern und Beschleunigungen der einzelnen Phasen kann eine gewünschte Schichtdicke erreicht werden. Die am Ende erzielte Lackdicke  $d_{\text{Schicht}}$  sinkt in guter Näherung linear mit der Quadratwurzel der Drehzahl  $U$  des ersten Schleudervorgangs. Es gilt:

$$d_{\text{Schicht}} \propto \sqrt{U}. \quad (3.100)$$

Der Bereich der so einstellbaren Dicken ist durch die Lackeigenschaften begrenzt.

Neben der Rotationsbeschichtung gibt es weitere Verfahren zum Auftrag von Photolack wie zum Beispiel Sprühbelackung, Tauchbeschichtung und Walzbeschichtung [88]. Kriterien zur Auswahl eines geeigneten Verfahrens sind unter anderem der verwendete Lack, die gewünschte Lackdicke und die Substratgröße.

Nach dem Auftragen der Lackschicht folgt ein Ausheizen, bei dem der Lösemittelgehalt im Lack stark reduziert und so der Lack stabilisiert wird. Dieser Prozessschritt wird als *prebake* oder *softbake* bezeichnet. Während des Ausheizens diffundiert das Lösemittel zur Oberfläche, wo es schließlich verdampft. Die Diffusionskonstante  $D(T, C)$ , die diesen Vorgang maßgeblich beschränkt, ist abhängig von der relativen lokalen Lösemittelkonzentration  $C$  und der Temperatur  $T$  und es gilt

$$D(T, C) = D_0 \exp\left[-\frac{E_1}{k_B T}\right] \cdot \exp\left[-\frac{C}{a + bC}\right] \quad \text{mit} \quad C \in [0, 1]. \quad (3.101)$$

$E_1$  ist hierbei die Aktivierungsenergie für die Diffusion, während  $D_0$  sowie  $a$  und  $b$  materialspezifische Konstanten [89] sind.

Durch die Lösemittelreduktion wird die Probe, bestehend aus Photolack auf einem Träger bzw. Substrat, widerstandsfähig für weitere Prozessschritte gemacht. Abhängig von der Lackschichtdicke liegt der Lösemittelgehalt nach dem Aufschleudern typischerweise bei 20 bis 40 % [89].

### 3.4.2 Belichtung

Als ausgedehnte UV-Lichtquelle zur Belichtung dient in der klassischen Lithographie für Auflösungen bis etwa 300 nm meist eine Quecksilberdampflampe. Gasentladungslampen im Allgemeinen emittieren Licht diskreter Wellenlängen, abhängig vom verwendeten Gas bzw. dessen Isotopen. Im Fall von Quecksilber liegen diese Spektrallinien zwischen 184 nm und 2325 nm und somit zumindest teilweise im ultravioletten Spektralbereich. Die für die Photolithographie interessanten Resonanzlinien von Quecksilber sind die drei Hauptemissionslinien, die sogenannte i-Linie bei etwa 365 nm, die h-Linie bei 404,7 nm und die g-Linie bei 435,8 nm [90].

Belichtungsmasken bestehen aus einem lichtundurchlässigen Muster auf einer Quarzglasscheibe. Das verwendete Quarzglas hat im Gegensatz zu den meisten anderen Glasarten eine hohe Transmissivität für ultraviolettes Licht. Bei Masken höchster Güte dient Chrom als lichtundurchlässiges Material. Zur Herstellung einer solchen Maske wird ein Substrat aus Quarzglas erst mit Chrom und anschließend mit Photolack beschichtet. Mittels eines Laser- oder Elektronenstrahls wird anschließend das gewünschte Muster in der Lackschicht belichtet, sodass nach dem Entwickeln nur das Chrom innerhalb der Musterkontur frei liegt. Im darauffolgenden Ätzprozess wird das Chrom an diesen Stellen entfernt. Im letzten Schritt wird der übrige Lack entfernt und so eine Belichtungsmaske mit kleinsten Strukturen in der Größe von etwa 3 µm bis 5 µm fertiggestellt. Eine weniger aufwändige und somit kostengünstigere Methode zur Herstellung solcher Masken ist der Druck auf eine Folie, welche typischerweise anschließend ebenfalls auf eine Quarzglasscheibe geklebt wird. Bei dieser speziellen Folie liegt die minimal erreichbare Strukturgröße bei etwa 10 µm bis 15 µm.

Bei der Positionierung der Belichtungsmaske oberhalb der Lackschicht können drei Varianten unterschieden werden: Die Abstandsbelichtung, die Kontaktbelichtung und die Projektionsbelichtung.



### Abstandsbelichtung

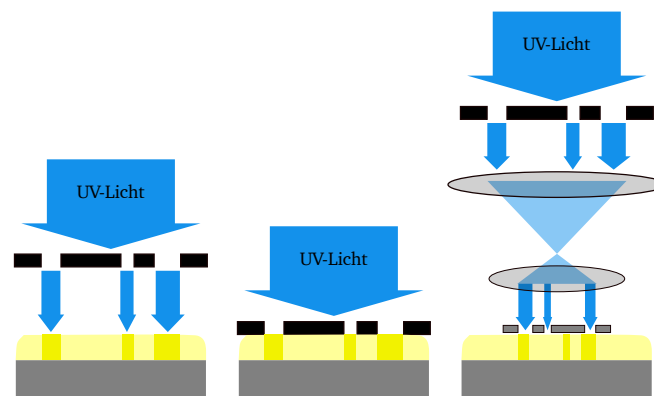
Eine maskenschonendere Konfiguration ist die sogenannte *Abstandsbelichtung*, auch bekannt als *Proximitybelichtung*. Dabei werden die Maske und Lackschicht so eingerichtet, dass ein Abstand (engl. *proximity gap*) von etwa  $10\text{ }\mu\text{m}$  bis  $50\text{ }\mu\text{m}$  zwischen beiden entsteht. Dieser Abstand hat zur Folge, dass die Maske nicht beschädigt werden kann. Allerdings sinkt die erzielbare Auflösung durch die an der Maskenstruktur entstehende Lichtbeugung.

### Kontaktbelichtung

Beim *Kontaktbelichten* liegt die Maske direkt auf der Lackschicht auf. Ein Vorteil dieser Vorgehensweise ist, dass die Auflösung nicht durch Beugung an der Maskenstruktur beeinträchtigt wird. Durch den direkten Kontakt der Maske mit dem Photolack kann es jedoch zu Verunreinigungen und Beschädigungen der Maske kommen. Dies kann zum Beispiel durch Anhaften der Maske am Lack passieren. Ein solches Anhaften kann durch eine Verringerung des Lösemittelgehaltes in der Probe vermieden werden.

### Projektionsbelichtung

Bei der dritten Anordnung, dem sogenannten *Projektionsbelichten*, wird die Belichtungsmaske über ein optisches System verkleinert auf die Lackoberfläche abgebildet. Dies bringt neben dem aufwändigeren Aufbau und Justage auch einige Vorteile mit sich. Die Maske wird geschont und durch die Verkleinerung der Strukturen auf der Maske werden Fehler der Maske entsprechend mit skaliert. Die unterschiedlichen Maskenpositionierungen sind in Abbildung 3.21 schematisch dargestellt.



**Abbildung 3.21:** Bei der Abstandsbelichtung oder auch Proximitybelichtung (links) gibt es einen wohldefinierten Abstand zwischen Maske und Photolack. Dieser Abstand existiert bei der Kontaktbelichtung (Mitte) nicht. Bei der Projektionsbelichtung (rechts) wird das Maskenmuster mit einem optischen System auf die Probe abgebildet.

Mithilfe der *Grautonlithografie* können 3D-Strukturen durch eine laterale Variation in der Belichtungsdosis und der damit verbundenen ortsabhängigen Entwicklungsrate erzeugt werden. Eine gewünschte Topographie kann erreicht werden, da sich der Absorptionskoeffizient, der bei Photolacken typischerweise bei etwa  $1\text{ }\mu\text{m}^{-1}$  bis  $2\text{ }\mu\text{m}^{-1}$  liegt, mit wachsender, empfangener Lichtdosis um Größenordnungen sinkt. Während die oberen Mikrometer zunächst das Licht absorbieren, werden diese mit steigender Lichtdosis belichtet und somit transparent. Während der weiteren Belichtung dringt Licht immer tiefer in die Lackschicht ein. So steigt die entwickelbare Schichtdicke annähernd linear mit der Belichtungsdosis an [91]. Die Variation der Belichtungsdosis kann auf unterschiedliche Weise erreicht werden. Dazu gehören die Mehrfachbelichtung, Grautonmasken, Pseudo-Grautonmasken und das Laser-Direktschreiben.

Während bei der Mehrfachbelichtung verschiedene binäre Belichtungsmasken verwendet werden, um die Belichtungsdosis ortsabhängig zu machen, variiert auf einer Grautonmaske der Transmissionsgrad innerhalb der Maske.

Bei einer Pseudo-Grautonmaske werden auf einer normalen binären Maske Strukturen verwendet, die



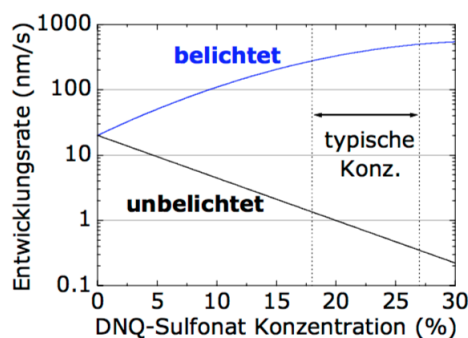
kleiner sind als die Auflösungsgrenze des verwendeten Projektionsobjektives. Dadurch kommt es zu einer Helligkeitsmodulation innerhalb der Struktur.

Beim Laserdirektschreiben, bei dem mithilfe eines Lasers ohne Maske direkt belichtet wird, wird die Belichtungsdosis durch Variation der Laserintensität erreicht [92]. Da die Belichtung linear von oben nach unten statt findet ist es mit einer einseitigen Belichtung nicht möglich, Formen mit Unterschnitt zu belichten. Eine beidseitige Belichtung ist zwar möglich, technisch jedoch sehr aufwändig.

### 3.4.3 Vernetzungsreaktionen von Negativlack

Nicht bei jedem Negativlack findet die Quervernetzung nach der Belichtung automatisch statt. So genannte *chemically amplified resists*, also chemisch verstärkte Lacke, vernetzen erst während eines Ausheizprozesses nach der Belichtung, dem *post-exposure-bake*, **PEB**. Diese Lackart benötigt die Hitze, die typischerweise bei etwa 100 bis 130 Grad Celsius liegt, um die Vernetzungsreaktion zu katalysieren. Dieses **PEB** sollte nicht verwechselt werden mit dem *postbake*. Der *postbake*, auch als *hardbake* bezeichnet, findet erst nach dem Entwickeln der Probe statt. Dabei kommt es zur weiteren Vernetzung des Lackes, wodurch dieser an mechanischer Stabilität gewinnt. Außerdem werden durch die Temperatur von etwa 120 bis 150 Grad Celsius, die nahe am Glaspunkt des Lackes liegt, Lösemittel, Wasser sowie Gase aus dem Lack entfernt. Am Glaspunkt respektive der Transformationstemperatur beginnt die verflüssigung eines amorphen Festkörpers. Dieser Punkt darf bei belichtetem Photolack nicht überschritten werden, um die Struktur nicht mechanisch zu zerstören.

Um die belichtete Struktur freizulegen, wird die Probe entwickelt, d.h. alle nicht vernetzten Teile werden entfernt. Dabei wird ausgenutzt, dass sich die Löslichkeit von Photolacken bei der Belichtung stark ändert. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 3.22 beispielhaft dargestellt.



**Abbildung 3.22:** Entwicklungsraten von belichtetem und unbelichtetem Photolack im Vergleich, hier dargestellt in Abhängigkeit der DNQ-Konzentration. Diazonaphthoquinone (DNQ) dient in unbelichtetem Photolack als Lösungsinhibitor. Gleichzeitig sorgt dieser Stoff bei vielen Negativlacken für die Polymerisation durch die Belichtung. Graphik entnommen aus [93] ©MicroChemicals.

In den Experimenten zur vorliegenden Arbeit lag das Hauptaugenmerk auf der Erzeugung kleinster Strukturen. In Folge dessen wurde ausschließlich Negativlack verwendet, um das zu belichtende Volumen möglichst gering halten zu können. In der folgenden Betrachtung der Vernetzungsreaktionen wird deshalb ausschließlich auf Negativlacke eingegangen.

Wie bereits in Unterkapitel 3.4 erwähnt, ist der im Photolack enthaltene Sensibilisator für die Initiierung der Vernetzung des Harzes verantwortlich und wird durch die Belichtung ausgelöst. Je nach Lack sind unterschiedliche chemische Reaktionen für die Vernetzung verantwortlich. Man unterscheidet zwischen der *radikalischen* bzw. der *ionischen Kettenpolymerisation*, sowie der *direkten Photopolymerisation* von Monomeren. Sowohl bei der radikalischen als auch der ionischen Kettenpolymerisation werden von einem Photoinitiator erst nach Strahlungseinwirkung die für die Kettenreaktion benötigten Starter freigesetzt.

Bei ionischer Kettenpolymerisation kann zudem zwischen kationisch und anionisch unterschieden werden.

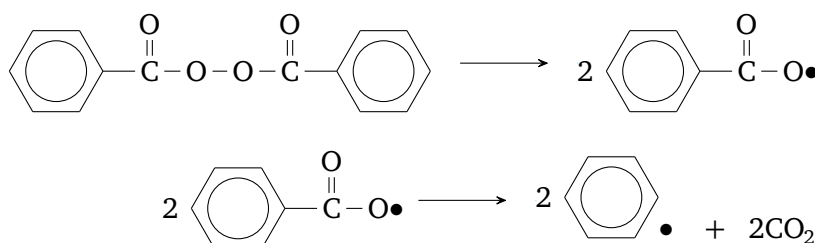
Zur Veranschaulichung der Grundfunktionsweise eines solchen Polymerisationsvorgangs soll an dieser Stelle die radikalische Kettenpolymerisation näher betrachtet werden [94]. Der Ablauf eines Polymerisationszyklus wird in vier Schritte unterteilt: die Initiation, die Startreaktion, das Kettenwachstum und der Kettenabbruch.

### Initiation

Radikalische Kettenpolymerisationen werden durch Radikale ( $\bullet$ ), also reaktive Teilchen, die ein freies Elektron besitzen, ausgelöst. Zur Erzeugung solcher Teilchen wird der Zerfall eines Initiators ( $I-I$ ) durch den Energieeintrag von UV-Licht genutzt.



In Abbildung 3.23 ist die Darstellung mit Strukturformeln anhand des Beispiels vom Zerfall von Benzoylperoxid verdeutlicht [94, 95].



**Abbildung 3.23:** Durch den Zerfall des Initiators wird das erste Radikal gebildet. Hier ist beispielhaft der Zerfall von Benzoylperoxid gezeigt.

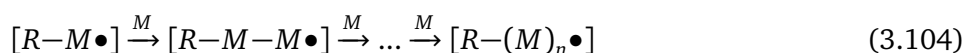
### Startreaktion

In der anschließenden Startreaktion bricht das erzeugte Radikal die  $\text{C}=\text{C}$ -Doppelbindung eines Monomers ( $M$ ) auf und verbindet sich mit diesem. So entsteht ein wachstumsfähiges Primär-Monomer-Radikal und bildet das erste Glied einer Kette.



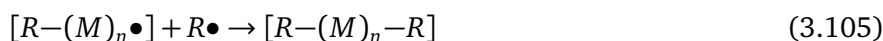
### Kettenwachstum

Die so entstandene Kette wird nun stetig verlängert, indem hinzukommende Monomere die Doppelbindung öffnen, sich anhängen und die Additionsreaktion fortführen. Man spricht hier von einer *Kopf-Schwanz-Polymerisation*, der aktive Kopf der Kette reagiert mit dem Schwanz eines Monomers unter gleichzeitiger Übertragung des aktiven Kopfs an das addierte Monomer.

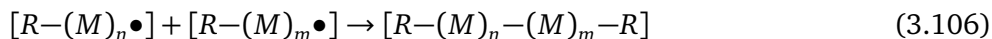


### Kettenabbruch

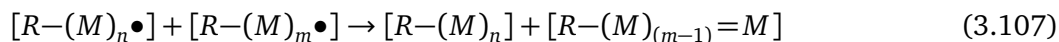
Verschiedene Reaktionen führen dazu, dass das freie Elektron gebunden wird und es zu keinem weiteren Kettenwachstum kommt. Eine solche Abbruchreaktion ist die *Initiatoraddition*. Wird ein freies Radikal, zum Beispiel aus der Initiatorbildung, an die Makromolekülkette angelagert, stoppt die Kettenbildung.



Eine *Rekombination* entsteht wenn die beiden aktiven Enden zweier Makromolekülketten sich aneinander anlagern. Auch hier ist kein weiteres Kettenwachstum möglich.



Bei einer *Disproportionierung* reagieren zwei Radikale unter Bildung einer gesättigten sowie ungesättigten Verbindung und das Kettenwachstum bricht ab.



Die Länge der entstandenen Kette ist hierbei vom Zufall abhängig. Allerdings nimmt die durchschnittliche Länge der Kettenmoleküle zu, wenn weniger Initiatoren zur Verfügung stehen [94]. Moderne Photolacke sind durch Zugabe von entsprechenden Inhibitoren und chemischen Verstärkern hochoptimiert. Die Inhibitoren sorgen für eine gute Langzeitstabilität und Verarbeitbarkeit. Die chemischen Verstärker erhöhen die Quanteneffizienz, also das Maß an Polymerisation bei Strahlungseinwirkung, und sorgen so für eine größere Stabilität der belichteten Strukturen. Gleichzeitig verringern sie den Dunkelabtrag, also den Abtrag von ausgehärtetem, vernetztem Photolack bei der Entwicklung.

In der vorliegenden Arbeit wurden zwei verschiedene Negativ-Photolacke verwendet: *AZ125nXT* und *SU-8 2025*. Der Lack der *AZ-Familie*<sup>1</sup> wurde unter anderem aufgrund seiner verkürzten Prozesskette gewählt. Anders als die meisten industriell gefertigten und verwendeten Negativlacke benötigt dieser weder ein *post-exposure-bake*, noch ein *hardbake*. Aufgrund dessen ist anzunehmen, dass dieser Lack für die direkte Photopolymerisation entwickelt und optimiert wurde. Genaue Angaben zu den chemischen Vorgängen dieser Lackgruppe macht der Hersteller allerdings nicht. Der zweite Lack, *SU-8*, ist ein chemisch verstärkter Photolack. Der enthaltene Photosäuregenerator bildet bei Bestrahlung mit UV-Licht eine geringe Konzentration an *Hexafluorantimonsäure*, die durch Protonieren des im Lack enthaltenen *Bisphenol A Novolak-Epoxy Oligomer* als Katalysator des Vernetzungsprozesses wirkt. Der *post-exposure-bake* aktiviert die Vernetzung der säurelabilen Gruppen und regeneriert den Säurekatalysator [96].

<sup>1</sup> Merck Performance Materials



---

## 4 Aufbau und Charakterisierung einer Anlage für die Zwei-Photonen-Polymerisation

Für die Erzeugung von 3D-Volumenkörpern wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Versuchsaufbau erstellt. Eine schematische Übersicht über den Aufbau ist in den Abbildungen 4.1 und 4.9 dargestellt. Das für die Belichtung notwendig Laserlicht im infraroten Spektralbereich wird von einem Titan:Saphir Laser zur Verfügung gestellt. Nach einigen optischen Elementen zur Manipulation des räumlichen Strahlprofils passiert der Laser die Schaltereinheit. Diese besteht aus einem *elektro-optischen-Modulator*, kurz **EOM** sowie einem Polarisatoren Paar. Ein Prismen Kompressor dient der Einstellung der Pulslänge. Die eingestellte Pulslänge kann mithilfe eines Autokorrektors gemessen werden. Dieser Teil des Aufbaus wird im Detail im Unterkapitel 4.1 vorgestellt.

Unterkapitel 4.2 befasst sich mit den Einzelheiten des Aufbaus, der für die Fokussierung des Lasers in der Probe verantwortlich ist. Die eigentliche Fokussierung ist mithilfe eines Objektivs realisiert. Zur gezielten Belichtung einzelner Punkte innerhalb der Probe dient ein Motorsystem. Der Belichtungsvorgang kann über eine Kamera überwacht werden.

Eine eigens für diesen Aufbau konzipierte Software übernimmt sowohl die Zerlegung eines 3D-Modells in einzelne Punkte, als auch die Steuerung und Synchronisation des EOM und der Motoren. Diese Software ist Inhalt von Unterkapitel 4.3.

---

### 4.1 Lasersystem und Strahlführung

---

Dieses Unterkapitel stellt zunächst das im experimentellen Aufbau verwendete Lasersystem vor. Anschließend wird die Funktionsweise der verwendeten Schalteinheit zum Ein- und Ausschalten des Laserlichtes erläutert. Es folgt ein Abschnitt über den verwendeten Laserkompressor, gefolgt von einem Abschnitt zum Autokorrektor.

---

#### Lasersystem

---

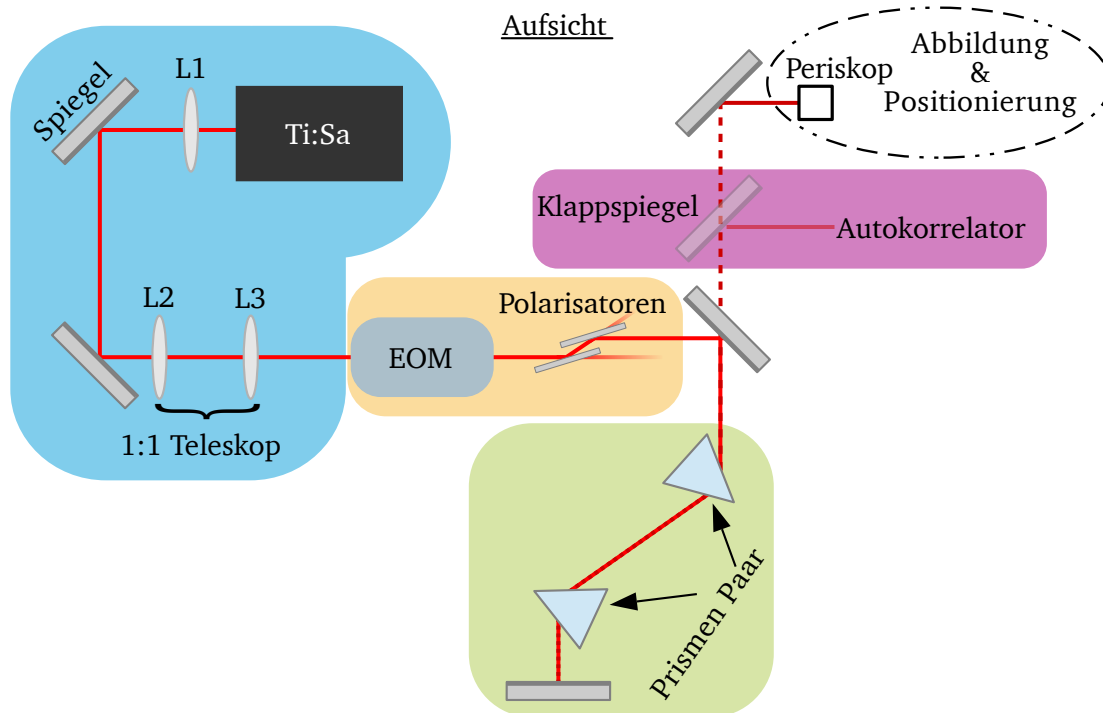
Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde eine Anlage zur Zwei-Photonen-Polymerisation aufgebaut. Das für die Zwei-Photonen-Polymerisation benötigte Laserlicht stellt hierbei ein Titan:Saphir Laser<sup>2</sup> zur Verfügung. Der intern verbaute Dioden gepumpte Feststofflaser<sup>3</sup> (kurz **DPSS-Laser**) bringt mit etwa 3 W optischer Ausgangsleistung Energie ins System. Diese Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von 532 nm in einer TEM<sub>00</sub>-Mode wird genutzt, um den Titan:Saphir Kristall des *Griffin-3* optisch zu pumpen. Das Lasersystem kann durch die folgenden Parameter charakterisiert werden:

Zentralwellenlänge	796 nm
Spektrale Breite (FWHM)	±22,9 nm
Pulslänge	100 fs
Repetitionsrate	80 MHz
Pulsenergie	4,4 nJ
Polarisation	horizontal

---

<sup>2</sup> KMLabs Inc., Griffin-3

<sup>3</sup> Laser Quantum, Opus 532



**Abbildung 4.1:** Aufbau für die Zwei-Photonen-Polymerisation. Das Laserlicht aus dem Titan-Saphir Laser wird mit der langbrennweitigen Linse L1 und dem 1:1-Teleskop aus den Linsen L2 und L3 kollimiert. Dieser hier blau hinterlegte Teil des Aufbaus wird im Abschnitt „Lasersystem“ beschrieben. Die „Schalteinheit“ aus EOM und Polarisatorenpaar ist orange hinterlegt und dient dem Schalten des Laserlichts. Das Prismenpaar in Doppelpass-Konfiguration bildet den „Kompressor“ (grün) und wird zur Einstellung der Pulslänge verwendet. Über einen Klappspiegel kann die zeitliche Pulsform mittels „Autokorrelator“ (violett) bestimmt werden. Die „Fokussierung und Positionierung“ wird über ein Periskop erreicht. Die genannten Bereiche des Aufbaus werden in den jeweiligen Abschnitten dieses Unterkapitels im Folgenden näher beschrieben.

Das Spektrum des Titan:Saphir Lasers ist in Abbildung 4.2 aufgetragen. In schwarz ist die Messkurve des Spektrometers<sup>4</sup> aufgetragen. Die rote Kurve zeigt eine an die Messdaten angepasste Gaußfunktion. Mithilfe der angepassten Funktion wird sowohl die zentrale Wellenlänge als auch die spektrale Breite bestimmt.

Die aus dem Oszillator kommende Strahlung in TEM<sub>00</sub>-Mode wird zunächst durch eine langbrennweitige Linse der Brennweite  $f = 500$  mm und ein 1:1-Teleskop in Kepler-Konfiguration ( $f = 150$  mm) kollimiert, so dass diese die dann folgende Schalteinheit ungehindert passieren kann.

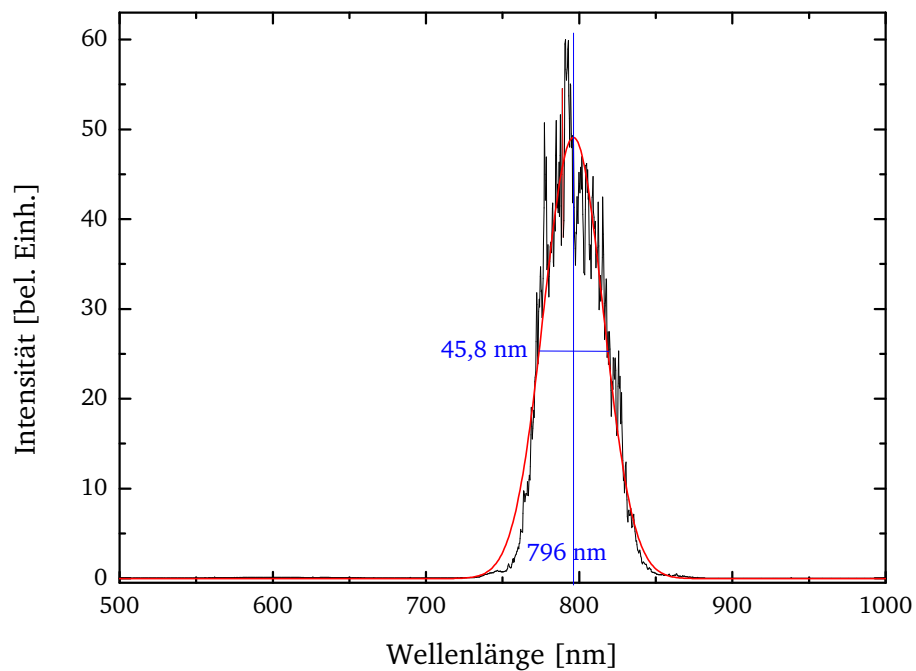
## Schalteinheit

Als Schalteinheit dient ein *elektro-optischer-Modulator*<sup>5</sup>, kurz **EOM** kombiniert mit dünnfilm Polarisatoren<sup>6</sup>. Dabei dreht der EOM die Polarisation des Laserlichts, so dass nur der Bruchteil des Lichtes,

<sup>4</sup> Avantes, AvaSpec-3648

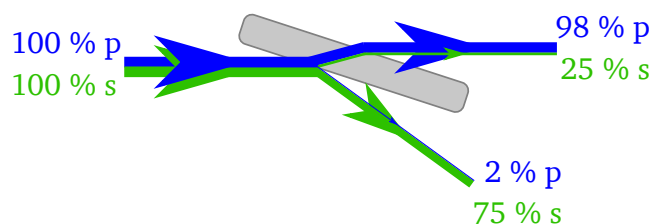
<sup>5</sup> Linos, LM 0202 mit Linos, High Voltage Amplifier LAV 400

<sup>6</sup> Laser Components, TFPK-800-PW1008UV



**Abbildung 4.2:** Spektrum des Titan:Saphir-Oszillators. In schwarz sind die Messdaten des Spektrometers aufgetragen. Die rote Kurve zeigt den Verlauf einer Gaußkurve, der zur Bestimmung der zentralen Wellenlänge und der spektralen Breite (FWHM) an die Messdaten angepasst wurde.

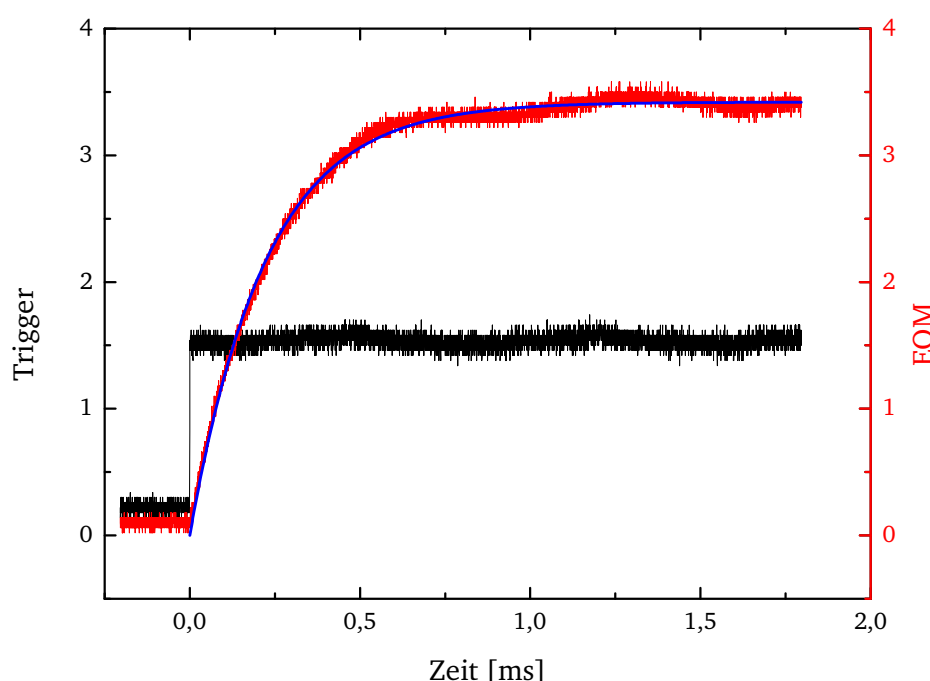
der weiterhin einer s-Polarisation entspricht, von den Polarisatoren reflektiert wird. Es wird das reflektierte Licht verwendet, da refraktive Elemente einen geringeren Einfluss auf die Pulslänge haben als diffraktive und die Trennung der beiden Polarisationsanteile in dieser Konfiguration besser ist. Laut Herstellerangaben werden im Idealfall pro Grenzfläche 75 % des s-polarisierten Lichtes reflektiert und 98 % des p-polarisierten Lichtes transmittiert. Während sich im transmittierten Anteil also bis zu 18,75 % s-polarisiertes Licht wiederfinden, sind im reflektierten lediglich 2 % p-polarisiertes Licht. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 4.3 graphisch dargestellt. Um die Strahlrichtung weitestgehend beizubehalten und die Trennung von s- bzw. p-polarisiertem Licht zu optimieren, kommen zwei Polarisatoren in Reihe zum Einsatz. Beide werden in Reflektion betrieben. Unter der Annahme, dass das Licht linear polarisiert ist, beträgt der maximale reflektierte Anteil 56,25 %. Der Schwarzwert liegt bei  $4 \cdot 10^{-4} \%$  der Ausgangsleistung. Der Aufbau der Schalteinheit sowie dessen Positionierung im Gesamtaufbau ist in Abbildung 4.1 dargestellt.



**Abbildung 4.3:** Trennungsverhältnis zwischen s- und p-polarisiertem Licht bei den verwendeten Dünnschichtpolarisatoren.

Die im Experiment verwendete Leistung kann über das Maß der durch den EOM verursachten Rotation der Polarisation manipuliert werden. Der Winkel der Rotation ist abhängig von der Spannung die am EOM anliegt. Dazu wird ein **TTL**-Signal (kurz für *Transistor-Transistor-Logik*), das die Steuersoftware *2PP-Utility* generiert (siehe Unterkapitel 4.3), durch eine selbstgebaute Elektronik einstellbar vorverstärkt, bevor ein zum EOM gehörender Verstärker die (0–10) V proportional auf (0–400) V verstärkt.

In Abbildung 4.4 ist der Graph zur Schaltzeitbestimmung aufgetragen. Zur Bestimmung wurde mithilfe einer schnellen Photodiode<sup>7</sup> und einem Oszilloskop die Lichtleistung nach dem Objektiv aufgenommen. Diese Messdaten sind in der Abbildung in rot dargestellt. In schwarz aufgetragen ist das Ausgangssignal der *2PP-Utility* Steuersoftware, das als Schaltsignal dient. Um die Schaltzeit zu bestimmen, wurde an der Verlauf des Photodiodensignals die Funktion  $y = A(1 - \exp(-kx))$  für ein beschränktes Wachstum ab dem Wert  $x = 0$  ms angepasst. Die Schaltzeit von 0,51 ms ergibt sich aus dem Wert der angepassten Funktion bei 90 % des Asymptotisch erreichten Wertes  $A = 3,42$ .



**Abbildung 4.4:** Bestimmung der Schaltzeit der verwendeten Schalteinheit aus EOM und Ansteuerelektronik. In schwarz dargestellt ist der Verlauf des Schaltsignals, das von der Steuersoftware *2PP-Utility* ausgeht. In rot aufgetragen ist der Verlauf der Lichtleistung nach dem Objektiv. Die blaue Kurve ist der Graph einer an die roten Messwerte angepassten Funktion. Durch diese Funktion wird die Schaltzeit von 0,51 ms bestimmt.

Ein Nachteil der verwendeten Kombination aus EOM und Polarisatoren für das schnelle Schalten ist die nicht unerhebliche Menge an Material, durch die der Laserpuls transmittiert wird. Dadurch kommt es zu einem großen Zuwachs der Dispersion mit entsprechender Pulsverlängerung. T. Buch hat in ihrer Arbeit [97] gezeigt, dass sich die Pulsdauer allein durch den EOM von etwa 140 fs auf 790 fs verlängert. Dies ist einer der Gründe, warum ein zusätzlicher Pulskompressor implementiert wurde. Alternativ zu EOM und Polarisatoren wäre ein *akusto-optischer Modulator*, kurz **AOM** denkbar. Die Funktionsweise eines AOM basiert auf dem akusto-optischen Effekt, bei dem mithilfe einer Schallwelle der Brechungs-

<sup>7</sup> EOT, InGaAs PIN Detector ET-3010



---

index eines Mediums, meist Glas oder Kristall, periodisch geändert wird. Durch dieses induzierte Gitter kommt es zur Brillouin-Streuung [98]. Bei geschickter Wahl der Komponenten kann die sogenannte Bragg-Bedingung erreicht werden. Diese zeichnet sich dadurch aus, dass die Ausdehnung des Mediums groß ist im Vergleich zur Wellenlänge der Ultraschallwellen. Die Bragg-Bedingung hat den Vorteil, dass es möglich ist, nur eine Beugungsordnung zu erzeugen. Auf diese Weise können bis zu 100 % der eingestrahlten Leistung abgelenkt werden [99]. Wird im Experiment der gebeugte Strahl verwendet, ist die Lichtleistung im Experiment bei ausgeschaltetem Zustand Null. Dies ist bei der aktuell im Aufbau befindlichen Schalteinheit nicht zu erreichen.

Da die verwendeten Beugungsmedien mit einer Ausdehnung im Bereich von wenigen Millimeter kurz sind, wird wenig Dispersion erzeugt. Der Schaltvorgang besteht darin, die Ultraschallwellen zu schalten. Die Schallwelle wird meist durch einen piezoelektrischen Ultraschallwandler initiiert, so dass typische Schaltzeiten im Bereich von  $\mu\text{s}$  erreicht werden.

---

## Kompressor

---

Um die durch die optischen Elemente hervorgerufene Dispersion zu kompensieren, passiert der Strahl im Anschluss an die Schalteinheit einen Prismenkompressor. Dieser ist aus zwei hochdispersiven Prismen aus SF10 Glas<sup>8</sup> im Abstand von 75 cm in Doppelpass-Konfiguration aufgebaut. Die prinzipielle Funktionsweise sowie die Eigenschaften einer solchen Konfiguration werden in Abschnitt 3.2.4 eingehend erläutert. Um den Einfluss noch folgender optischer Komponenten, wie den des Objektivs, zu berücksichtigen, wird der Kompressor so eingestellt, dass eine Überkompensation stattfindet. Um eine Pulslänge in der Größenordnung von 50 fs nach dem Objektiv zu erhalten, hat sich eine Pulskompression über den Punkt des kürzesten Pulses hinaus hin zu etwa 190 fs als tauglich erwiesen. Nach dem Kompressor verringert sich die Frequenz des Lasers innerhalb eines Pulses linear mit der Zeit. Man spricht in diesem Fall von einem *negativen chirp*. Dies hat zur Folge, dass die durch transmittive Elemente verursachte Dispersion zu einer zeitlichen Verkürzung des Laserpulses führt. Dieses Phänomen wird in Abschnitt 3.2.3 genauer beschrieben. Die zeitliche Pulsform des Laserpulses wird mithilfe eines hintergrundfreien Intensitäts-Autokorrelators gemessen. In Abbildung 4.1 ist die Lage des Prismenkompressors dargestellt.

---

## Autokorrelator

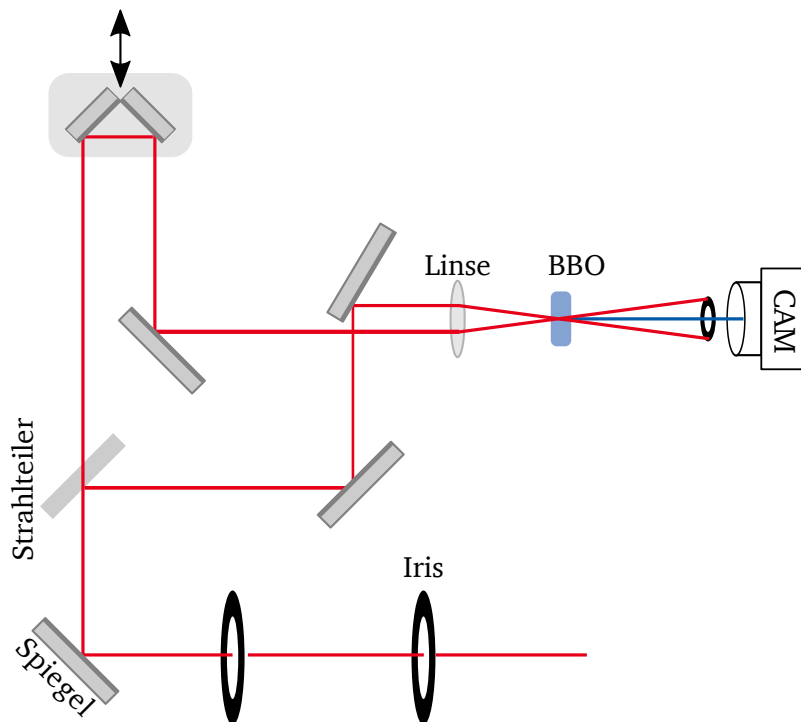
---

In Abschnitt 3.2.5 wird die theoretische Funktionsweise eines Intensitäts-Autokorrelators erläutert. Die praktische Umsetzung dieses Messinstrumentes im Aufbau zur vorliegenden Arbeit ist in Abbildung 4.5 skizziert und in Abbildung 4.6 dargestellt. Eine detailliertere Beschreibung dieses Autokorrelators kann der Arbeit von Frau T. Buch [97] entnommen werden. Um die Pulslänge nach dem Prismenkompressor messen zu können, ist ein Klappsiegel in den Gesamtaufbau integriert. Mithilfe dieses Spiegels wird der Laserstrahl nach dem Kompressor, aber vor der Fokussierung in den Autokorrelator abgezweigt. Dies ist in Abbildung 4.1 violett hinterlegt.

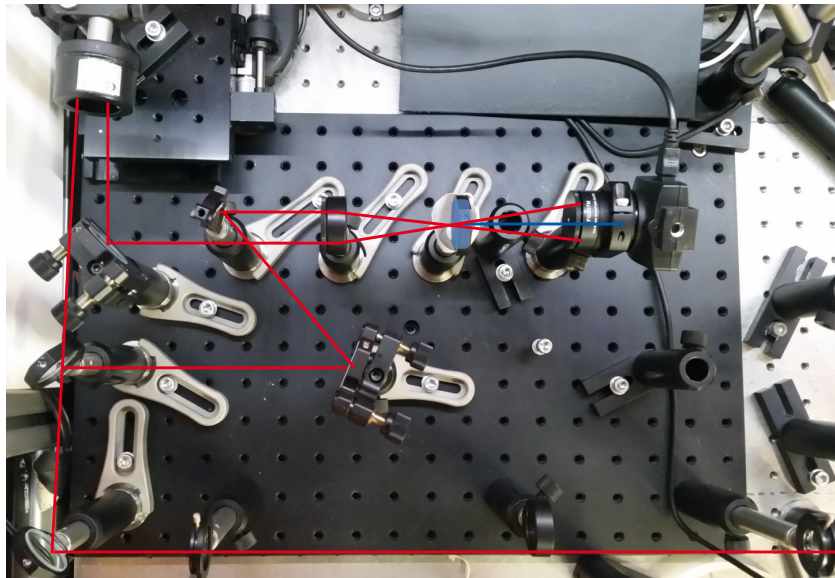
Die Messung der Pulslänge des aus dem Kompressor kommenden Strahls ist in Abbildung 4.7 aufgetragen. Die schwarzen Kreuze entsprechen hierbei den Messdaten des Autokorrelators. Die rote Linie zeigt eine angepasste Lorentzfunktion. Über die angepasste Funktion kann die Halbwertsbreite bestimmt werden. Diese liegt hier bei 387,4 fs. Da der Skalierungsfaktor zum Berechnen der Pulslänge aus der Autokorrelationsspur bei der Lorentzfunktion gerade zwei entspricht, ergibt sich eine Pulslänge von 193,7 fs.

---

<sup>8</sup> Laser Components, EDP-30-SF10

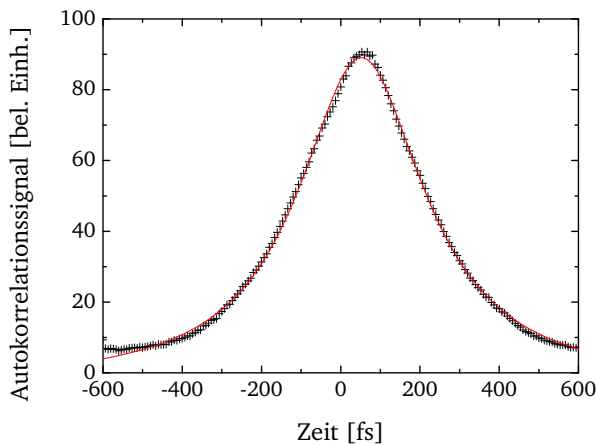


**Abbildung 4.5:** Schematischer Aufbau eines hintergrundfreien Intensitäts-Autokorrektors. Die beiden Irisblenden dienen als Orientierung beim Einfädeln des Strahls in den Autokorrektor. Der Strahlteiler teilt den Laserstrahl in zwei gleiche Teile. Mithilfe eines beweglichen Spiegelpaares kann die Weglänge einer der Strahlen verändert werden. Sowohl der verzögerte, als auch der nicht verzögerte Strahl werden von einer Linse in einen BBO-Kristall fokussiert, wo sie sich überlappen. Das im Überlappungsbereich entstehende frequenzverdoppelte Licht wird von einer Kamera detektiert.

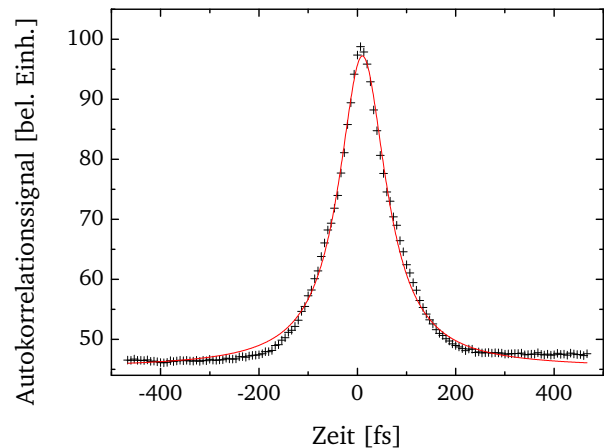


**Abbildung 4.6:** Foto des verwendeten Autokorrekturaufbaus. Der Aufbau entspricht dem Schema aus Abbildung 4.5.

Wie bereits erwähnt, ist der Puls an dieser Stelle überkomprimiert, um nach dem Objektiv eine kurze Pulslänge zu erreichen. Um die Pulslänge nach dem Objektiv bestimmen zu können, wird das aus dem Objektiv kommende Licht mithilfe einer aspherischen Linse<sup>9</sup> weitestgehend kollimiert und in den Autokorrelator eingekoppelt. Aufgrund der hohen Brechkraft des Objektivs ist eine vollständige Kollimation mit diesem Aufbau nicht möglich. Nichts desto trotz ist es so möglich, die Pulslänge nach dem Objektiv zu messen. Eine solche Messung ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Über die in rot dargestellte, an die schwarzen Messdaten angepasste Lorentzfunktion ist eine Pulslänge von 58,65 fs bestimmt worden.



**Abbildung 4.7:** Autokorrelationsmessung des Laserpulses direkt nach dem Prismenkompressor. An die in schwarz dargestellten Messdaten wurde eine Lorentzfunktion angepasst (rote Linie). Die Pulslänge an dieser Stelle des Aufbaus beträgt 193,7 fs.



**Abbildung 4.8:** Autokorrelationsmessung nach dem Objektiv. Die schwarzen Kreuze entsprechen den Messdaten. Über eine Lorentzfunktion (rote Linie) wurde die Pulslänge von 58,65 fs ermittelt.

## 4.2 Fokussierung und Positionierung

Das folgende Unterkapitel stellt den experimentellen Aufbau zur Abbildung und Positionierung der Probe sowie dem Fokussieren des Lasers vor. Dieser Teil des Aufbaus, der in Abbildung 4.9 dargestellt ist, schließt direkt an den Aufbau zum Abschnitt „Lasersystem und Strahlführung“ (Unterkapitel 4.1, Abbildung 4.1) an.

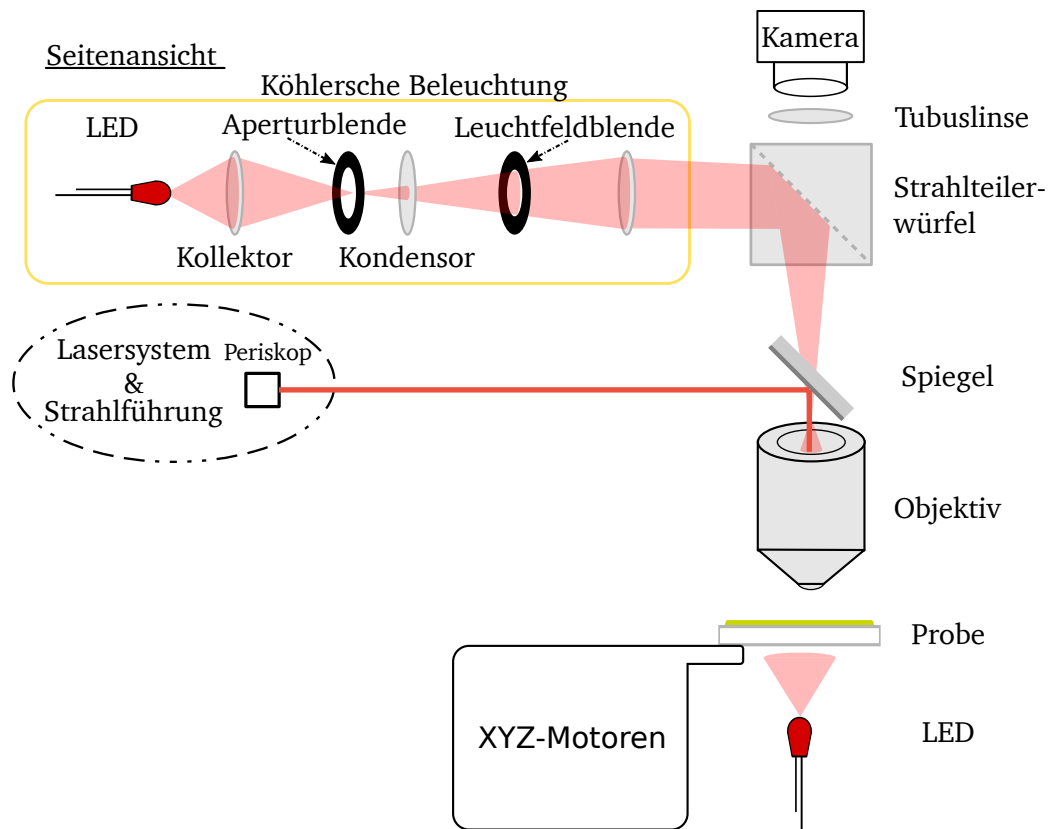
Um die Probe, die sich auf dem Positionierungssystem befindet, von oben abbilden und mit dem Laser beleuchten zu können, wird der Laserstrahl über ein Periskop auf eine zweite Etage, etwa 28 cm oberhalb der Tischfläche, geführt. Mithilfe eines rückseitenpolierten Spiegels wird das von hinten kommende Laserlicht nach unten durch das Objektiv auf die Probe fokussiert. Das Abbildungssystem bildet die Probe durch den Spiegel ab.

### Abbildung der Probe

Oberhalb des rückseitenpolierten Spiegels befindet sich eine Linse, die als Okular dient und gemeinsam mit dem Objektiv<sup>10</sup> ein Mikroskop bildet. Am oberen Ende dieses Mikroskops befindet sich eine

<sup>9</sup> Thorlabs, 352330-B

<sup>10</sup> Zeiss, C-Achroplan 32x/0.85 W Corr M27



**Abbildung 4.9:** Seitenansicht des oberen Teilaufbaus zur Zwei-Photonen-Polymerisation. Der gelb eingerahmte Aufbau entspricht der Köhlerschen Beleuchtung. Die Kamera blickt sowohl durch den Strahlteiler, der das Licht zur Beleuchtung zum Experiment leitet, als auch durch den rückseitig polierten Spiegel, der das Laserlicht in Richtung Objektiv lenkt.

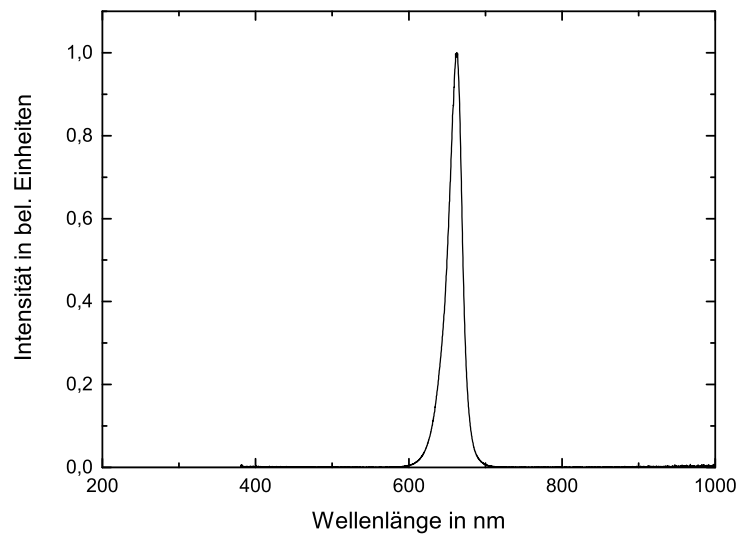
CMOS-Kamera<sup>11</sup>, die ein Bild der Probe aufnimmt. Mit der verwendeten Linse und den eingestellten Abständen wird eine Vergrößerung von 1:870 erreicht. Die Abbildung ist so eingerichtet, dass ihr Schärfe punkt mit dem Laserfokus übereinstimmt. Auf diese Weise kann mithilfe der Abbildung sichergestellt werden, wo sich der Laserfokus befindet.

Durch einen Strahlteilerwürfel zwischen Kamera und rückseitenpoliertem Spiegel wird Licht eingekoppelt, das aus einer *Köhlerschen Beleuchtung* kommt. Die Köhlersche Beleuchtung besteht aus einer Lichtquelle, einem Kollektor, einer Leuchtfeldblende, einer Öffnungsblende und einem Kondensor. Die Anordnung dieser Elemente entspricht der Darstellung des gelb eingerahmten Bereichs in Abbildung 4.9. Durch diese zweistufige Beleuchtung wird eine homogene Ausleuchtung des Sichtbereiches erreicht. Der Kollektor erzeugt ein reelles Abbild der Lichtquelle am Ort des objektseitigen Brennpunktes des Kondensors. Dieses Bild befindet sich somit auf Höhe der Aperturblende, mit der deshalb die Größe der ausgeleuchteten Fläche in der Objektebene eingestellt werden kann. Über die Leuchtfeldblende, direkt hinter dem Kollektor, kann die transmittierte Lichtmenge eingestellt werden, ohne Einfluss auf die Homogenität der Ausleuchtung zu nehmen.

Bei Proben auf transparentem Substrat hat sich eine Durchlichtmikroskopie als vorteilhaft erwiesen. Diese wird durch eine LED-Beleuchtung unterhalb der Probe realisiert. Um den Photolack nicht zu belichten, kommt in beiden Fällen eine LED<sup>12</sup> mit einer Emission um 660 nm zum Einsatz. Das Spektrum der verwendeten LEDs ist in Abbildung 4.10 dargestellt.

<sup>11</sup> IDS, uEye UI-1240SE-M-GL

<sup>12</sup> Thorlabs, M660L2



**Abbildung 4.10:** Spektrum der zur Beleuchtung verwendeten LED M660L2. Die dargestellten Daten wurden am 29.08.2017 der Website des Herstellers [www.thorlabs.com](http://www.thorlabs.com) entnommen.

---

### Fokussierung

---

Zur Fokussierung wird das in Abschnitt „Abbildung der Probe“ bereits erwähnte Objektiv der Firma Zeiss<sup>10</sup> mit einer 32-fachen Vergrößerung und einer Numerischen Apertur von  $NA = 0,85$  verwendet. Der durch das Objektiv erreichbare Fokusradius im Beugungslimit in transversale Richtung kann mithilfe der Gleichung (3.26) abgeschätzt werden auf

$$w_0 = \frac{800 \text{ nm}}{0,85\pi} \approx 300 \text{ nm.} \quad (4.1)$$

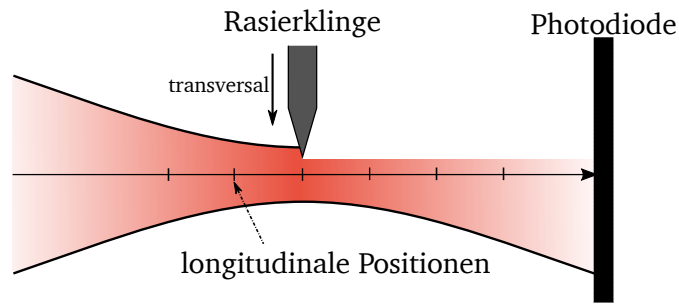
Die longitudinale Ausdehnung des Fokus kann durch die Rayleigh-Länge genähert werden. Aus Gleichung (3.25) und dem oben bestimmten  $w_0$  ergibt sich ein Wert von etwa  $z_R = 353 \text{ nm}$ . Es ist zu bedenken, dass die paraxiale Näherung, die den verwendeten Formeln zugrunde liegt, für stark fokussierte Laserstrahlen ihre Gültigkeit verliert. Beim verwendeten Objektiv, mit einer Numerischen Apertur von  $NA = 0,85$ , liegt die oben getroffene Abschätzung sicher im Randbereich der Gültigkeit dieser Definition. Da bei der Zwei-Photonen-Polymerisation, bedingt durch die Nichtlinearität des Prozesses, hauptsächlich der Kernbereich des Laserstrahls beteiligt ist, wird trotz des Grenzfalls die obige Abschätzung vorgenommen [21].

Zur experimentellen Bestimmung der Ausdehnung des Lasers im Fokus nach dem Objektiv wurde die sogenannte *Knife-Edge-Methode* verwendet. Bei diesem Messverfahren wird an verschiedenen longitudinalen Positionen rund um den Fokus eine Rasierklinge transversal in den Laserstrahl bewegt und die transmittierte Laserleistung gemessen. Dies ist in Abbildung 4.11 schematisch dargestellt.

Durch Anpassen der Funktion

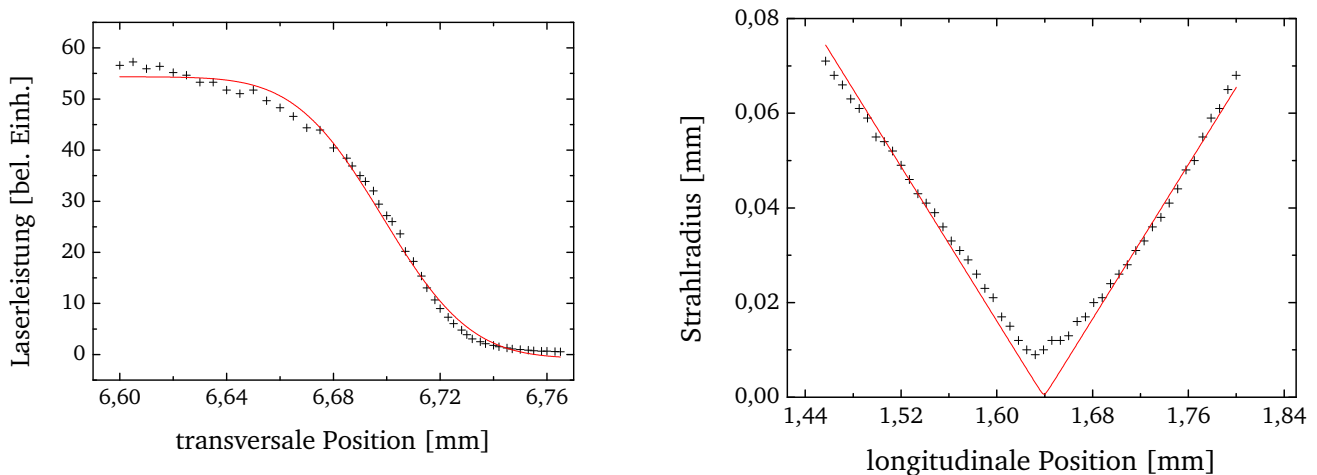
$$P(z) = P_{\max} - \frac{P_0}{2} \cdot \operatorname{erf}\left(\sqrt{2} \frac{(x - x_0)}{w}\right) \quad (4.2)$$

an den Leistungsverlauf während der teilweisen Abschattung kann der  $1/e^2$ -Strahlradius an der jeweiligen longitudinalen Position bestimmt werden.



**Abbildung 4.11:** Schematischer Aufbau für die Messung des Fokusbereichs mit der Knife-Edge-Methode. Eine Rasierklinge wird an verschiedenen longitudinalen Positionen rund um den Fokus transversal in den Laserstrahl bewegt. An jeder Position wird der Verlauf der transmittierten Laserleistung gemessen.

Wie bereits in den vorherigen Kapiteln soll auch hier die Ausbreitungsrichtung des Lasers als  $z$ -Richtung definiert werden. Eine solche Messung ist beispielhaft für eine  $z$ -Position in der linken Abbildung von 4.12 aufgetragen. Der Verlauf des Strahlradius über die  $z$ -Positionen entspricht der eines Gaußstrahls und kann somit durch die Funktion (3.22) angepasst werden. Der rechte Teil von Abbildung 4.12 zeigt eine solche Anpassung zur Bestimmung der Fokusgröße. Es konnte so ein Strahlradius im Fokus von  $w_0 = 624 \text{ nm}$  bestimmt werden. Die Abweichung der angepassten Funktion von den Messdaten im Bereich der Strahltaile ist dadurch zu erklären, dass die Rasierklinge eine endliche Dicke hat und den sehr kleinen Fokus nicht scharf abdecken kann. Für die Rayleigh-Länge ergibt sich ein Wert von  $z_R = 1,529 \mu\text{m}$ . Die Diskrepanz zwischen der Fokusgröße und Rayleigh-Länge im Beugungslimit und den gemessenen Werten kann zum einen auf kleine Fehljustagen und nicht ideales Strahlprofil bei der Messung zurück geführt werden, zum anderen sind auch die errechneten Werte durch die Näherung fehlerbehaftet.



**Abbildung 4.12:** links: Verlauf der transmittierten Laserleistung beim teilweisen Abschatten des Strahls durch eine Rasierklinge. Die schwarzen Kreuze sind Messwerte an verschiedenen transversalen Positionen der Rasierklinge. In rot aufgetragen ist die an die Messwerte angepasste Funktion gemäß Gleichung (4.2) zur Bestimmung des Strahlradius.  
rechts: Strahlradius an unterschiedlichen longitudinalen Positionen (schwarze Kreuze). Die rote Kurve ist an die Messdaten angepasst und dient der Bestimmung des Fokusbereichs.



Während der Zwei-Photonen-Polymerisation muss sich der Laserfokus relativ zur Probe in drei Raumrichtungen bewegen. Im Aufbau zur vorliegenden Arbeit wird dazu die Probe mithilfe von drei Motoren bewegt. Die verwendeten Linearmotoren *XMS160*, *XMS50* und *VP-5ZA* von der Firma Newport stellen einen Verfahrweg von 160 mm für die X-Achse, 50 mm für die Y-Achse und 4,8 mm für die Z-Achse zur Verfügung. Trotz der relativ großen Verfahrwege erreichen die Motoren nach Herstellerangaben eine bidirektionale Wiederholgenauigkeit von bis zu 80 nm. Die absolute Positioniergenauigkeit liegt bei 1,5 µm. Die maximale Geschwindigkeit der X- bzw. Y-Achse liegt bei 300 mm/s bei einer Beschleunigung von 2500 mm/s. Die hohe Genauigkeit kommt der Zwei-Photonen-Polymerisation zugute. Die große Reichweite wird in anderen Anwendungen, wie zum Beispiel der Materialbearbeitung mit Laserstrahlung, genutzt. Zur Steuerung der Motoren wurden verschiedene Motor-Controller von Newport eingesetzt.

Die Gründe, die zum Wechsel des Controllers vom XPS-Q auf das XPS-RL Modell geführt haben und wie diese Controller angesteuert werden, wird in Unterkapitel 4.3 erläutert.

---

### 4.3 Verwendete Software

---

Zur Ansteuerung kommt eine an der TU Darmstadt im Rahmen der Diplomarbeit von Herrn M. Windisch [75] eigens zu diesem Zweck entwickelte Software zum Einsatz. Die folgende Beschreibung richtet sich nach dieser Arbeit. Die Ansteuersoftware, *2PP-Utility*, war im Verlauf der vorliegenden Arbeit noch in der Entwicklung und wurde stetig verbessert und erweitert. Die in *Objective-C* programmierte Anwendung dient dazu, die zu belichtenden Strukturen „Software seitig“ zu verarbeiten und das Positioniersystem sowie die Schalteinheit entsprechend zu steuern.

3D-Objekte, die hergestellt werden sollen, müssen zunächst mit einem **CAD**-Programm konstruiert werden. Solche *computer-aided-design*-Programme zur *rechnerunterstützten Konstruktion* finden sich in unterschiedlichsten Variationen am Markt. Als gemeinsames Austauschformat hat sich das **STL**-Format etabliert. Dieses Dateiformat wurde 1987 von der *Albert Consulting Group* für *3D Systems* entwickelt um die CAD-Modelle für das erste generative Fertigungsverfahren, die **Stereolithography**, aufzuarbeiten. Dabei ist es in der Lage, beliebig geformte Begrenzungsflächenmodelle (kurz **Breps**, von engl. *boundary representation*) durch Approximation der Oberfläche mittels Dreiecksflächen zu beschreiben. Jede dieser sogenannten *Facets* wird durch die Angabe der drei Eckpunkte und der Flächennormalen definiert. Bedingt durch dieses Konzept der Oberflächenbeschreibung wird das Akronym STL oft auch als *Surface Tessellation Language* (von eng. *Tessellation*, „die Mosaikarbeit“) oder *Standard Triangle Language* übersetzt.

Der Tradition der generativen Fertigungsverfahren folgend wird bei der *2PP-Utility* das CAD-Modell zunächst im STL-Format hochgeladen, um im Anschluss aus der Datei arbeiten zu können. Aufwendigere Dateiformate, die beispielsweise eine logische Unterscheidung zwischen Materialien oder Attribute zur Farbe bieten, sind für die Zwei-Photonen-Polymerisation schlicht nicht notwendig, da es sich immer um das gleiche Ausgangsmaterial, den Photolack, handelt. Nachdem die Datei mit der Repräsentation der Targetgeometrie gespeichert wurde, wird im ersten Verarbeitungsschritt das Modell auf ein dreidimensionales Gitter fester Gitterkonstante abgebildet. Analog zum Pixel in einem 2D-Gitter werden die Elementarzellen des Gitters hier, im dreidimensionalen Fall, **volumen Pixel**, oder kurz **Voxel** genannt. Diese Art der *Voxelisierung*, also die Zerlegung eines analytisch gegebenen Modells in reguläre Gitterzellen, liegt nahe, da das durch den Laserfokus polymerisierte Lackvolumen bei korrekt gewählter Gitterkonstante eine den Voxeln entsprechende Geometrie aufweist. Obwohl das Prinzip der Voxelisierung bereits seit einigen Jahrzehnten im Blickpunkt der theoretischen Informatik liegt, ist es immer noch Gegenstand aktueller Forschung. Trotz der enormen Steigerung der Rechenleistung moderner Computer wären beispielsweise die moderne Computertomografie ohne die stetige Weiterentwicklung der Voxelisierungstechniken und Algorithmen nicht denkbar. Auch die Grundlage numerischer Modellierungen

basiert groÙteils auf Voxelisierungen. Von der Vielzahl dieser Mglichkeiten kommt aufgrund der gegebenen Randbedingungen der Zwei-Photonen-Polymerisation nur eine kleine Gruppe in Frage. Dabei handelt es sich um die Gruppe der Algorithmen, die nicht-konvexe Objekte verarbeiten knnen und dabei konservativ voxelisieren. Um eine konservativen Voxelisierung handelt es sich, wenn ausnahmslos alle Voxel erfasst werden, die von irgendeiner Begrenzungsflche des Modells geschnitten werden. Dies spielt fr die sptere Klassifizierung eine auÙerordentlich groÙe Rolle. Diese Bedingungen an den Algorithmus werden durch die Forderung der Bearbeitbarkeit beliebig geformter Strukturen in frei whlbarer Auflsung vorgegeben.

Der zu voxelisierende Raum wird aufgespannt, durch die sogenannte *Bounding Box*. Diese dreidimensionale Box wird dadurch charakterisiert, dass ihre Kantenlnge der jeweils grÙten Ausdehnung den Targets in der entsprechenden Richtung entspricht. Um die weitere mathematische Verarbeitung der Daten mglichst einfach und damit effizient zu halten sind die Kanten der Bounding Box parallel zu den drei Bewegungsrichtungen des Systems ausgerichtet. Als definierte Randbedingung liegt die Box mit dem Target immer vorne links unten dicht. Die GrÙe der Box wird also nach hinten oben rechts in vielfachen der ElementarvoxelgrÙe so lange erweitert, bis die Targetstruktur vollstndig eingefasst wird. Grundlage der Klassifizierung aller Voxel ist eine vorangehende *Oberflchenvoxelisierung*. Dabei wird zunchst nur bestimmt, ob ein gegebenes Elementarvolumen von einer Begrenzungsflche des Modells tangiert wird oder nicht. Im Gegensatz zur letztendlichen *Volumenvoxelisierung* bei der jedes Voxel klassifiziert werden soll, werden zunchst also nur Oberflchenvoxel identifiziert. Die Entscheidung, ob ein Volumen von einer Begrenzungsflche geschnitten wird, beruht mathematisch auf der Betrachtung, ob sich alle vier Eckpunkte des Volumens auf der gleichen Seite der Begrenzungsflche befinden. Ist dies der Fall, wird das Volumen nicht geschnitten und es handelt sich nicht um ein Oberflchenvoxel.

Beim Speichern eines Volumens von  $1 \text{ mm}^3$  mit einer Auflsung von  $200 \text{ nm}$  in Voxeldarstellung, wird selbst bei einer speicherplatzeffizienten Darstellung in einem dreidimensionalen Booleschen Array eine Kapazitt von

$$\left( \frac{1 \text{ mm}}{200 \text{ nm}} \right)^3 \triangleq 5000^3 \text{ Bit} = 15,625 \text{ GB} \quad (4.3)$$

bentigt.

Wie an Gleichung (4.3) zu sehen ist, steigt der Speicherbedarf proportional mit dem Volumen der Struktur an. Auf den wenigsten handelsblichen Rechnersystemen ist es mglich eine so groÙe Datenmenge im Hauptspeicher zu halten. Da ein *Swappen*, also das Ein- und Auslagern von Arbeitsspeicher auf Massenspeicher, die Verarbeitungszeit extrem erhhen wrde, die Voxel Darstellung fr die Zwei-Photonen-Polymerisation aber unverzichtbar ist, muss das Gesamtproblem in geeignete, logische Teilstcke zerlegt werden.

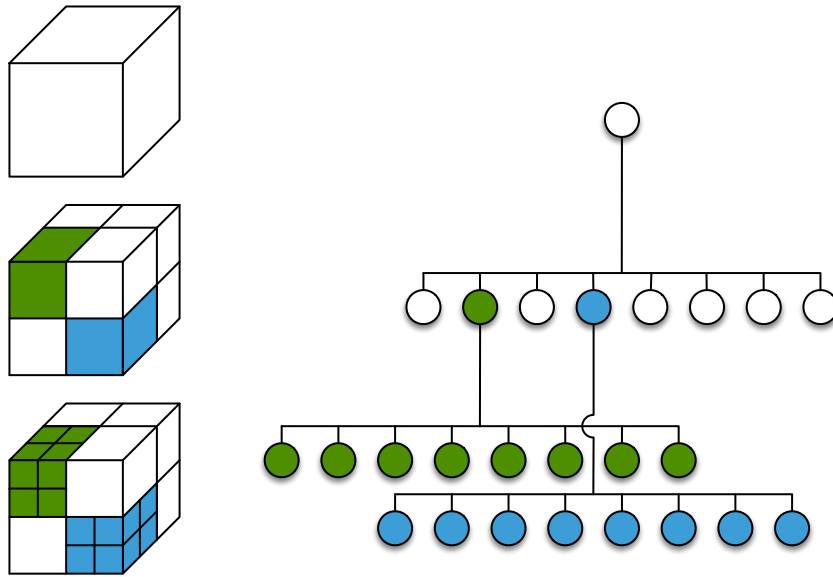
Um die Voxelisierung mglichst effizient zu gestalten kommt das Konzept des Oktalbaumes zu tragen. Oktalbume werden in der Computergraphik hufig angewendet, da es mit ihnen mglich ist jegliche Objekte in drei Dimensionen mit beliebiger Genauigkeit abzubilden [100]. Das Wurzelement reprsentiert den gesamten Datensatz. Bei den nachfolgenden Partitionierungen besitzt jeder Knoten des klassischen, gerichteten Baumes genau acht oder gar keinen Nachfolger. Im ersten Schritt wird die Gesamtmenge  $M$  also in acht disjunkte, gleichmchtige Teilmengen  $M_i$  aufgeteilt. Es gilt:

$$M = \bigcup_{i \in I} M_i \quad \text{mit} \quad M_i \cap M_j = \{\} \quad \forall i \neq j \in I \quad (4.4)$$

Durch rekursive Anwendung dieses Prinzips kann die Ausgangsmenge beliebig verfeinert werden. Abbildung 4.13 zeigt die Verfeinerung eines Wrfels nach zwei Iterationen.

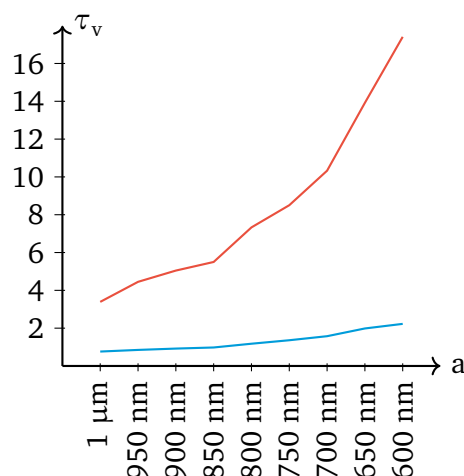
Bei der Verwendung eines Oktalbaumes zur Effizienzsteigerung bei der Voxelisierung fr die Zwei-Photonen-Polymerisation, bildet die Bounding Box das Wurzelement. Zur Festlegung der Bounding Box wurde diese in Einheiten des Elementarvoxels quantisiert, jedoch keine quadratische Form verlangt. Infolgedessen mssen im Laufe der Iterationen nicht alle entstehenden Volumina in acht gleiche,





**Abbildung 4.13:** Funktionsweise eines Oktalbaumes: Die Wurzel des Baumes repräsentiert das gesamte Volumen. Es wurde zweimal verfeinert. Ein Knoten auf der zweiten Unterebene repräsentiert bereits nur noch 1/64 des Volumens. Bild entnommen aus [75].

disjunkte Teilmengen separierbar sein. In jedem Iterationsschritt werden nur Partitionen verfeinert, die von der Begrenzungsfläche des Modells geschnitten werden und die minimale Größe des Elementarvoxels noch nicht erreicht haben. Dadurch, dass ganze achsenparallele Cluster von Elementarvoxeln innerhalb und außerhalb des Modells nicht weiter zerlegt bzw. untersucht werden müssen, kann sehr viel Rechenzeit und Speicherplatz eingespart werden. War der Speicherbedarf ohne Oktalbaum noch proportional zum Volumen des Modells, so wird der Speicherbedarf mit Oktalbaum im Grenzfall eines großen Modells respektive einer starken Verfeinerung in guter Näherung gegen eine Funktion proportional zur Begrenzungsfläche des Modells konvergieren.



**Abbildung 4.14:** Performancegewinn bei der Voxelisierung durch intelligente Raumpartitionierung. Es wurde die Voxelisierungsdauer in Sekunden über die Gitterkonstante aufgetragen. Beide Male wurde dieselbe quadratische Pyramide voxelisiert. Die rote Kurve zeigt die Voxelisierung ohne Raumpartitionierung, die blaue Kurve die Voxelisierung mit einem Oktalbaum. Entnommen aus [75].

Trotz dieser enormen Einsparung an Speicherplatz durch das Oktalbaumverfahren kann aufgrund der immer noch großen Datenmengen nicht sichergestellt werden, dass der gesamte Baum im Hauptspeicher gehalten werden kann. Um ein *Swappen* sicher zu verhindern wird das Modell in z-Richtung in äquidistante Stücke zerlegt. Die Höhe jedes Teilstücks entspricht hierbei der gewählten Auflösung der Voxelisierung. Entsprechend der Belichtungsstrategie wird bei der Voxelisierung der Teilintervalle mit der untersten Scheibe begonnen. Diese Zerlegung, die den Oktalbaum zu einem Quartalbaum degenerieren lässt, führt dazu, dass die gesamte Rechenzeit und der Speicherbedarf höher wird als er bei der einfachen Voxelisierung des Gesamtmodells wäre. Jedoch kann durch die Reduktion auf ein quasi-zweidimensionales Problem das Auslagern auf den Massenspeicher vollständig unterdrückt werden. Die dadurch gewonnene Rechenzeiterparnis führt zu einer positiven Bilanz, so dass der Zeitaufwand letztendlich deutlich minimiert wird. Ein weiterer Vorteil der erzwungenen Vorpartitionierung in z-Richtung ist es, dass abgebrochene Voxelisierungsvorgänge leichter wieder aufgenommen werden können. Das eigentlich dreidimensionale Modell kann nun durch die scheibenweise Bearbeitung als Konvolut zwei Dimensionaler Datensätze gespeichert werden. Voxel des Gittermodells werden zu Pixel eines Bitmaps, wobei die Auflösung der Bitmap mit der Gitterkonstante des Voxelgitters korrespondiert. Da die Höhe jeder Scheibe der eines Elementarvoxels entspricht reicht die Kenntnis über die Lage jeder einzelnen Scheibe innerhalb des Modells zur vollständigen Rekonstruktion aus. Der Übergang von der Scheibe zum Bitmap wird über eine orthogonale Projektion der gefüllten Raumbereiche auf eine Bitmap entsprechender Größe realisiert. Zum Speichern der erzeugten Bitmaps dient das Format *Portable Network Graphics*, kurz *PNG* da es lizenzgebührenfrei ist, der Farbraum auf hart schwarz/weiß eingeschränkt werden kann und es verlustfrei komprimierbar ist.

Die endgültige Klassifizierung der Raumbereiche in

Hülle des Modells	durch die Oberflächenvoxelisierung erfasste Bereiche
Teil des Modells	Raumbereiche, die im inneren des Modells liegen
Teil der Umgebung	Raumbereiche, die entweder außerhalb des Modells liegen oder innerhalb von Hohlräumen in diesem

wird auf Basis der bereits Oberflächenvoxelisierten 2D-Darstellung vorgenommen. Um Artefakte durch Fehlklassifizierungen weitestgehend zu vermeiden wird nicht ausschließlich Pixelweise kategorisiert, sondern mit unscharfen Zugehörigkeitsfunktionen für Segmente gearbeitet. Hierzu werden zunächst Segmente durch den *Flood-Fill-Algorithmus* definiert. Dieser Algorithmus fasst benachbarte Pixel, die ein gewisses Homogenitätskriterium erfüllen, zusammen. Das gleiche Vorgehen findet in vielen Graphikeditoren Anwendung, um zusammenhängende Pixel einer bestimmten Farbe zu erfassen und neu zu füllen. Um nun den gefundenen Teilbereichen das passende Attribut entsprechend ihrer Lage – Modellhülle, Inneres oder Umgebung – zuzuordnen, wird ausgenutzt, dass die Strukturen der 2D-Schnitte ausnahmslos geschlossene Konturen aufweisen. Dies können wir als gegeben annehmen, da die Dichtigkeit des 3D-Modells auch eine Dichtigkeit der einzelnen Schnitte bedingt. Bei der Betrachtung des Schnittes durch eine Kugel, also einen Kreis, wird direkt klar, dass ein von einem beliebigen Punkt im inneren startender Strahl die Kugelhülle genau ein mal durchbricht. Ein solches Kriterium kann auch auf beliebige Formen verallgemeinert werden.

„Gegeben sei ein vollständig dichtes, flächenbegrenztes Modell  $M$  beliebiger Geometrie. Es sei vorausgesetzt, dass sich die Begrenzungsflächen des Modells nur an ihren Kanten berühren und sich nicht schneiden. Weiterhin gelte, dass sich die Schnittpunkte beliebig gewählter Geraden mit Begrenzungsflächen des Modells beliebig genau bestimmen lassen.“ [75]

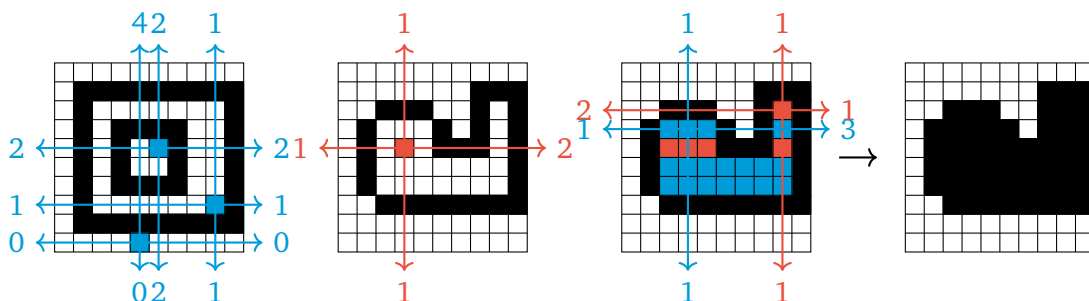
Dann gilt:

Ein Punkt  $P$  liegt genau dann innerhalb des Modells, wenn von ihm ausgesandte Strahlen der Form  $s : P = \vec{p} + \lambda \vec{r}$  mit  $\lambda \in \mathbb{R}, \vec{r} \in \mathbb{R}^+ \setminus (0, 0, 0)^T$  mit dem Modell eine ungerade Anzahl Schnittpunkte hat und dies für beliebige  $\vec{r}$  fast immer, mindestens aber unendlich oft gilt.  $P$  liegt außerhalb des Modells, wenn die Anzahl der Durchstoßungen gerade ist, insbesondere liegt  $P$  mit Sicherheit außerhalb des

Modells, wenn mindestens ein  $\vec{r}$  gefunden werden kann, für dessen Strahl das Modell nicht durchstoßen wird [75].

Durch die diskretisierte Hülle des Modells auf ein Gitter ist die Forderung nach einem beliebig genau bestimmten Schnittpunkt nicht zu erfüllen. Darüber hinaus ist die Anzahl an Richtungsvektoren  $\vec{r}$  die voneinander abweichende Strahlen zur Folge haben begrenzt. Dieser Umstand kann zu Artefakten bei der Klassifizierung führen. Um solche Artefakte zu unterdrücken muss sichergestellt werden, dass alle zu einem Segment gehörenden Pixel der gleichen Klasse angehören. Dies wird durch einen Vergleich und entsprechende Korrekturen innerhalb eines Segmentes erreicht, vorausgesetzt die Zahl der Artefakte ist klein gegenüber der Pixelzahl innerhalb des Segmentes. Dieses aus dem Gebiet der Theorie unscharfer Mengen bekannte Verfahren zur unscharfen Klassifizierung ist als *Fuzzy-Logik* bekannt. Die Auswirkung der Fuzzy-Logik ist in Abbildung 4.15 dargestellt.

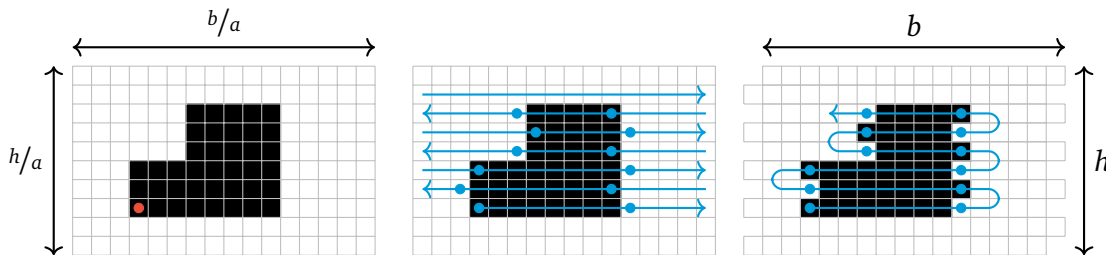
Die Bitmaps der einzelnen Ebenen, die nach dem oben beschriebenen Prinzip erstellt wurden, können als virtuelle Belichtungsmaske verstanden werden. Im Gegensatz zur klassischen Photolithographie, bei der mithilfe einer ausgedehnten UV-Lichtquelle bekannter Lichtleistung der gesamte Maskenbereich simultan belichtet wird, muss bei der Zwei-Photonen-Polymerisation prinzipiell jedes Elementarvolumen einzeln belichtet werden. Die in den Lack gebrachte Lichtdosis in  $\text{mJ cm}^{-2}$  entspricht bei der 2D-Lithographie der Leuchtmittelintensität in  $\text{mW cm}^{-2}$  multipliziert mit der Belichtungszeit in s. Dies muss bei der Zwei-Photonen-Polymerisation als Belichtungszeit pro Voxel definiert werden. Wegen experimenteller Randbedingungen, wie endlicher Beschleunigung und Schaltzeit des Laserlichtes, hat es sich jedoch als sachdienlich erwiesen, nicht jedes Voxel einzeln zu belichten, sondern eine kontinuierliche Bahnkurve zu generieren. Diese Bahn muss so gewählt werden, dass jedes Voxel genau einmal mit definierter, gleichmäßiger Geschwindigkeit überstrichen wird. Der in Unterkapitel 4.2 beschriebene Motor-Controller ist in der Lage sogenannte *PVT-Trajektorien* zu interpretieren. PVT steht hier für *Point, Velocity, Time*. Durch ein entsprechendes Wertetripel  $(\Delta\vec{x}, \vec{v}, \tau)$  wird jede Stützstelle der Bahn charakterisiert. Dabei gibt  $\Delta\vec{x}$  den Versatz zum Endpunkt des Elements,  $\vec{v}$  die Austrittsgeschwindigkeit an diesem Punkt und  $\tau$  die Elementdauer an.



**Abbildung 4.15:** Klassifizierung einzelner Pixels durch Aussendung vierer achsenparalleler Strahlen. Die ersten beiden Bilder greifen einige Punkte heraus, wobei farblich hervorgehobene Pixel klassifizierbar sind, während rote Pixel Artefakte darstellen. Der Übergang vom dritten zum vierten Bild zeigt, wie eine unscharfe Klassifizierung verwendet werden kann, um die überwiegende Klassifizierung des Segments, nämlich „zum Modell gehörig“, auf das gesamte zu Segment übertragen und somit die Artefakte zu eliminieren. Entnommen aus [75].

Eine Trajektorie, die sicher alle Punkte abdeckt ist diejenige, die die gesamte Fläche der Bitmap zeilenweise von oben nach unten abrastert. Die Randbedingung einer konstanten Geschwindigkeit beim Belichten wurde auf eine konstante Geschwindigkeit innerhalb des Belichtungsbereiches erweitert. Um beim Zeilenwechsel die maximale Beschleunigung der Motoren nicht zu überschreiten, existiert ein Bahnkurvenabschnitt außerhalb der Bounding Box. Durch eine geschickte Wahl der Stützstellen auf denen die Trajektorie basiert, kann also eine konstante Geschwindigkeit beim Überstreichen der zu belichtenden Stellen sichergestellt werden. Um nur die Stellen zu belichten, die einem schwarzen Pixel in der virtuellen Maske entsprechen, ist es notwendig das Laserlicht zu schalten. Das Schaltsignal wird an

die Stützstellen der Trajektorie gekoppelt. Zu Beginn eines „schwarzen“ Segmentes muss das Laserlicht an sein, am Ende dieses Segmentes, was mit dem Beginn eines „weißen“ Segmentes oder eines Zeilenwechsels zusammen fällt, muss es aus gehen. Die Lage dieser strategischen Stützpunkte ist in Abbildung 4.16 illustriert.



**Abbildung 4.16:** Bestimmung der Stützstellen für die PVT-Trajektorie im Pixelbild als Veranschaulichung der mathematischen Beschreibung. Im linken Bild wird der Startpunkt der Trajektorie im Pixelbild bestimmt (Schritt 1). Im mittleren Bild wird für jede Zeile jeweils die Bestimmung der Übergangspunkte dargestellt (Schritt 2), die Suchrichtung wird mittels der farbigen Pfeile angezeigt. Das rechte Bild zeigt die Trajektorie nach Koordinationstransformation und Zeilenausgleich, wobei die Abmessungen der Scheibe wieder mit den x-y-Abmessungen der Bounding-Box des Modell übereinstimmen. Entnommen aus [75].

Im Laufe der vorliegenden Arbeit und der Entwicklung der *2PP-Utility*, wurden verschiedene Möglichkeiten der Kopplung zwischen Fahrtweg und Schaltsignal getestet. Der Motor-Controller XPS-Q8 bietet die Möglichkeit ein sogenanntes *Event-Action* Tupel zu definieren. Diese Funktion sieht vor, dass zum Beispiel an das Event „Start der Trajektorie“ die Action „Output auf high schalten“ gekoppelt werden kann. Diese Funktion wurde in der ersten Iteration der *2PP-Utility* eingesetzt. Da die Anzahl der zeitgleich gespeicherten Tupel auf 50 limitiert ist, mussten die Event-Action-Paare in Echtzeit generiert und an den Controller übergeben werden. Dies hat zu Problemen ungeklärter Ursache in der Firmware des Controllers geführt. Um die Event-Action Funktion nicht weiter verwenden zu müssen, wurde ein zusätzlicher Mikrocontroller implementiert, der anhand einer Liste von Zeitpunkten die Schaltsignale liefert. Vor dem Start eines Modellschnitts wird die Liste mit den Zeitpunkten der Stützstellen an den Mikrocontroller übergeben. Beim Start der Belichtung gibt der Motor-Controller ein Startsignal an den Mikrocontroller, so dass der Zeitpunkt „Null“ klar definiert ist. Da es keine weitere Synchronisation zwischen XPS-Controller und Mikrocontroller gibt, kommt es zu Fehlern aufgrund ungleicher Zeitmessungen und Verarbeitungszeiten. Die aktuell letzte Erweiterung der *2PP-Utility* war die Integration des XPS-RL Motor-Controllers. Dieses Nachfolgemodell aus der bereits erwähnten XPS Serie stellt eine erweiterte PVT-Trajektorien Funktion zur Verfügung. Hierbei ist es möglich, zu jedem PVT-Trajektorienelement einen Schaltzustand eines GPIO (kurz für englisch *general purpose input/output*) zu definieren. Die Weiterverarbeitung dieses Ausgangssignal im TTL-Standard (kurz für *Transistor-Transistor-Logic*) kann dem Unterkapitel 4.1 entnommen werden.

Für eine detaillierte Beschreibung der Programmlogik der *2PP-Utility* sei auf die Arbeit von Herrn M. Windisch [75] verwiesen.

## 5 Erzeugung von Strukturen mittels Zwei-Photonen-Polymerisation

In diesem Kapitel wird der gesamte Prozess zur Erzeugung von Targets mittels Zwei-Photonen-Polymerisation dargestellt. Dabei sollen alle Schritte mit ihren Werten und Einstellungen in der entsprechenden Reihenfolge aufgeführt werden. Begonnen bei der Präparation der Probe, über das Aufbereiten der im CAD-Programm erstellten Druckvorlage bis hin zum Belichten und Entwickeln des Targets.

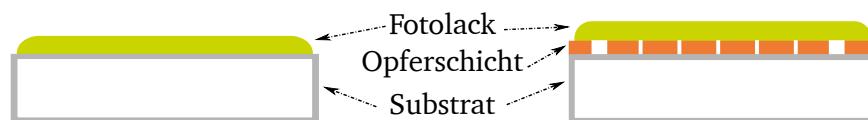
Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedenartige Proben verwendet. Neben Proben, bei denen sich der Photolack direkt auf einem Substrat befindet, wurden auch Substrate mit Opferschicht zum Ablösen der belichteten Struktur getestet. Diese Opferschicht ist notwendig, da die belichteten Strukturen sonst nicht vom Trägermaterial gelöst werden können.

Um die sehr kleinen Targets handhaben zu können, wird eine größere Haltestruktur benötigt. Diese bildet einen Rahmen, der das Target beherbergt. Zur Zeitoptimierung wird diese größere Struktur durch klassische UV-Lithographie belichtet. Die Kombination aus UV-Lithographie und Zwei-Photonen-Polymerisation wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmals angewendet.

Abbildung 5.3 veranschaulicht die gesamte Prozesskette. Die einzelnen Teilprozesse werden in den folgenden Abschnitten erläutert.

### 5.1 Präparation der Probe

In dieser Arbeit wird als Probe die Kombination aus fertig präpariertem Photolack auf einem Trägermaterial bezeichnet. Der Ausdruck Probe bleibt auch bestehen, wenn sich zwischen Substrat und Lack eine Opferschicht befindet. Diese beiden grundlegenden Kombinationen, aus denen sich eine Probe zusammensetzt, sind in Abbildung 5.1 noch einmal verdeutlicht.



**Abbildung 5.1:** Schematischer Aufbau einer Probe. Links aus Substrat und Photolack, rechts mit Opferschicht. Die Strukturierung in der Opferschicht dient als Justagemarkierung.

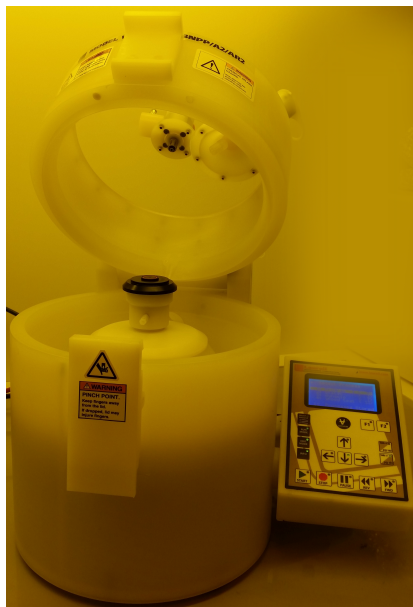
Die ersten Proben, die im Verlauf dieser Arbeit entstanden sind, sind AZ125nXt<sup>13</sup>-Photolackschichten auf einem Substrat aus Glas. Als Glasträger werden Standard-Abdeckgläser aus der Mikroskopie verwendet. Diese quadratischen Gläser haben eine Kantenlänge von 20 mm und sind 175  $\mu\text{m}$  dick. Da nur kleinste Volumenkörper im Bereich von wenigen  $\mu\text{m}^3$  erzeugt werden sollen, bietet sich so ein kleines Format hervorragend an. Der Lack wird mit dem in Abbildung 5.2 gezeigten Spincoater<sup>14</sup> auf das Substrat aufgeschleudert. Die dabei erreichte Lackdicke definiert sowohl die Dicke der späteren Haltestruktur, als auch die maximale Dicke des 3D-Objekts. Das notwendige Parameterset zum Aufschleudern einer Lackschicht mit einer Dicke zwischen 100  $\mu\text{m}$  und 130  $\mu\text{m}$  wurde in Zusammenarbeit mit W. Krüger im Rahmen seiner Bachelorarbeit [101] eruiert. Die entsprechenden Werte des Aufschleuderprogramms sind in Tabelle 5.1 zu finden.

<sup>13</sup> Merck Performance Materials

<sup>14</sup> Laurell Technologies Corporation, WS-650MZ-23NPP/A2/AR2

Schritt	Drehzahl in 1/s	Dauer in s
1	300	10,0
2	1000	1,2
3	800	12,0
4	2000	1,5

**Tabelle 5.1:** Programmablauf zum Aufschleudern von 100  $\mu\text{m}$  bis 130  $\mu\text{m}$  AZ125nXt-Photolack. Auf Grundlage von [101]



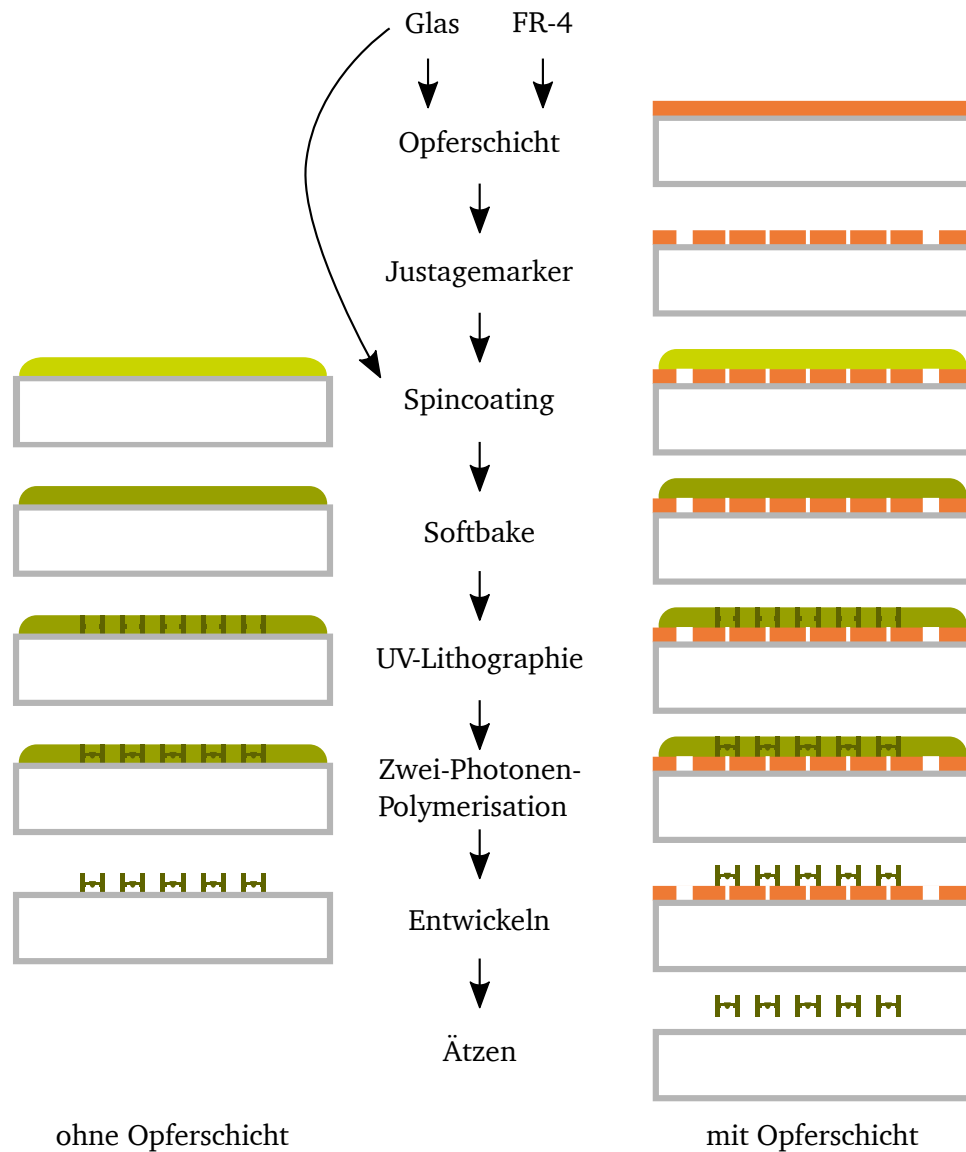
**Abbildung 5.2:** Im experimentellen Aufbau verwendeter Spincoater WS-650MZ-23NPP/A2/AR2 der Firma Laurell Technologies Corporation. Die für die Probenpräparation verwendeten Parameter zum Aufschleudern von 100  $\mu\text{m}$  bis 130  $\mu\text{m}$  Photolack sind in Tabelle 5.1 aufgeführt.

Nach dem Aufschleudern folgt ein Softbake. Die Probe wird dazu auf eine Heizplatte gelegt, die über eine Stunde kontinuierlich auf 140 °C aufheizt. Nach weiteren 40 min bei dieser Temperatur wird die Heizplatte ausgeschaltet und die Probe kühlt langsam auf Raumtemperatur ab. Das Einhalten dieses Ausheizprozesses ist wichtig, da gewährleistet sein muss, dass genügend Lösemittel verdampft. Dies stellt sicher, dass die Probe bei der folgenden UV-Kontaktbelichtung (siehe Unterkapitel 3.4) nicht an der Belichtungsmaske kleben bleibt. Ein zu geringer Lösemittelgehalt beeinträchtigt allerdings wiederum die Zwei-Photonen-Polymerisation. Die genannten Werte sind im Rahmen dieser Arbeit gefundene Erfahrungswerte und weichen teilweise von Herstellerangaben [102] ab.

Strukturen, die auf derart vorbereiteten Proben erzeugt werden, können nicht vom Glas abgelöst werden. Die Möglichkeit, belichtete Bereiche mittels Durchlichtmikroskopie in der Vorbereitung der Zwei-Photonen-Polymerisation sehen zu können, bringt jedoch einige Vorteile mit sich. Eine ausführlichere Diskussion dieser Tatsache ist in Unterkapitel 4.2 zu finden.

Wird zuerst die klassische Belichtung durchgeführt, ist zum Ausrichten der Zwei-Photonen-Polymerisation keine zusätzlichen Justagemarkierungen notwendig. Die bereits belichteten Haltestrukturen können zur Orientierung herangezogen werden, da diese in der Durchlichtmikroskopie sichtbar sind. Dieses Verfahren wird in Unterkapitel 4.2 näher beschrieben.

Um das Ablösen fertig belichteter Targets vom Trägermaterial zu ermöglichen, wird eine sogenannte Opferschicht benötigt. Diese befindet sich zwischen Photolack und Substrat, so wie in Abbildung 5.1 schematisch dargestellt. Nach dem Entwickeln wird die Opferschicht durch ein entsprechendes Ätzmittel entfernt, sodass die Targets frei zugänglich sind.



**Abbildung 5.3:** Flussdiagramm zur Veranschaulichung der Prozesskette bei der Herstellung von Zwei-Photonen-Polymerisations-Targets in UV-lithographisch hergestellten Haltestrukturen. Während die Proben mit FR-4 als Substrat ausschließlich mit Opferschicht verwendet wurden, fanden die Glassubstrate auch ohne Opferschicht Anwendung.

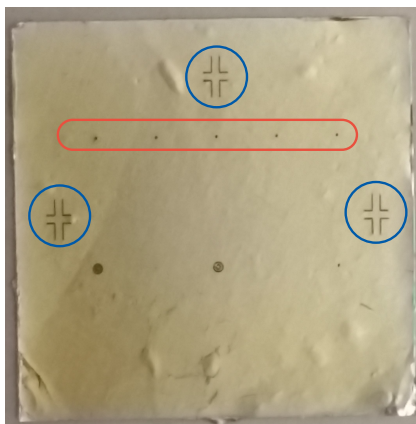
Zum Aufbringen der Opferschicht wurden zwei Varianten angewendet. Im Detektor- und Targetlabor wurde auf die Glassubstrate zunächst eine etwa 13 µm dicke Schicht Aluminium aufgeklebt, bevor der Lack aufgeschleudert wurde. Es wurden auch verschiedene Versuche unternommen, Aluminium auf das Glassubstrat auf zu sputtern. Es hat sich allerdings gezeigt, dass das Sputtern von Aluminium einen erhöhten, experimentellen und zeitlichen Aufwand verursacht, sodass das Aufkleben von Aluminiumfolie vorzuziehen ist.

Eine zweite Variante aus Substrat und Opferschicht wurde im Rahmen des durch die Förderinitiative Interdisziplinäre Forschung der TU Darmstadt (FiF) von 2015-2018 geförderten Forschungsprojekts

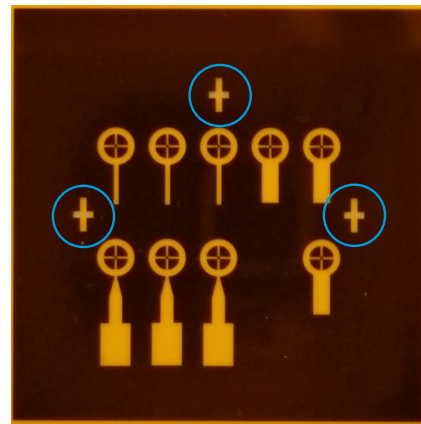


**JUMP** (Hochintegrierte aktiv Justierbare Lasertargets zur Untersuchung von Materie im Plasmazustand), am Institut für Elektromechanische Konstruktionen, **EMK**, von Herrn R. Dörr angefertigt. Diese besteht aus einem Wafer aus FR-4 (einem glasfaserverstärkten Epoxydharz) als Substrat, mit einer 36 µm dicken Opferschicht aus Kupfer und SU-8-Lack. Der SU-8-Photolack wurde aufgrund der am **EMK** üblichen Prozessabläufe gewählt. Im Gegensatz zum AZ125nXt-Lack benötigt der SU-8-Lack einen *post-exposure-bake* was den Arbeitsaufwand bei der Verarbeitung erhöht.

Durch die metallische Opferschicht ist eine Durchlichtmikroskopie nicht weiter möglich. Aufgrund des geringen Brechungsindexunterschieds von belichtetem und unbelichtetem Lack ist jedoch auch eine Abbildung mit Auflichtmikroskopie nicht möglich. Um die relative Position zwischen UV-belichteter Haltestruktur und Zwei-Photonen-Polymerisations-Target zu definieren, werden deshalb Justagemarker in die Metallschicht eingebracht. Die Aluminiumschicht wird dazu durch Laserablation, im Detektor- und Targetlabor, partiell abgetragen. Eine solche Probe mit Opferschicht aus Aluminium und Markern ist in Abbildung 5.4 gezeigt. Die blauen Kreise markieren die Justagemarker für die UV-Lithographie, in rot eingrahmt sind fünf Positionen für die Zwei-Photonen-Polymerisation.



**Abbildung 5.4:** Probe bestehend aus Glas-träger mit Aluminiumopferschicht. In blau markiert sind die Justagemarker für die UV-Belichtung. Die fünf Positionen für die Zwei-Photonen-Polymerisation sind rot markiert.



**Abbildung 5.5:** Maske für die Belichtung der Haltestrukturen. Die hellen Haltestrukturen sind UV-durchlässig, der schwarze Bereich ist UV-undurchlässig. In blau markiert sind die Justagemarker. Design von W. Krüger [101].

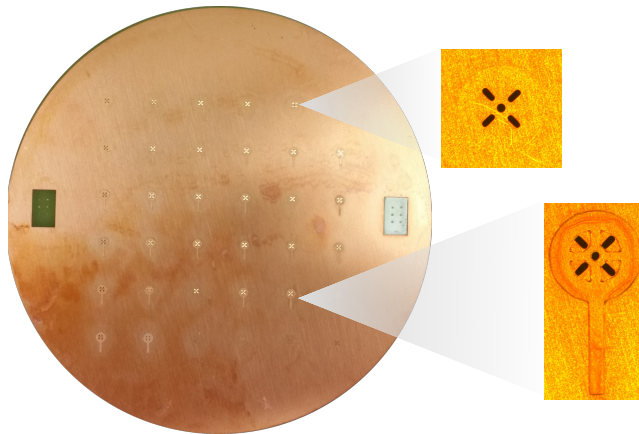
Die Justagemarker bei den *FR-4* Wafern mit Kupferschicht hingegen werden durch gezieltes wegätzen der Kupferschicht erzeugt. Dazu wird eine dünne Schicht Positiv-Photolack aufgeschleudert und die Justagemarker werden mit einer klassischen UV-Masken-Belichtung belichtet. Nach dem entsprechenden Ausheizen und Entwickeln liegt das Kupfer an den Stellen frei an denen die Justagemarker entstehen sollen. Wird eine so präparierte Probe in ein Bad mit Kupfer-Ätze gelegt, werden die Justagemarker freigelegt. Anschließend wird diese erste Schicht Photolack entfernt, bevor der SU-8-Lack aufgebracht wird. Abbildung 5.6 zeigt einen auf diese Weise strukturierten Wafer. Der abgebildete Wafer wurde bereits belichtet und entwickelt. Die Haltestrukturen wurden bereits teilweise abgelöst.

## 5.2 UV-Belichtung

Nachdem der Photolack wie beschrieben auf dem Träger aufgebracht wurde, werden zunächst UV-lithografisch Haltestrukturen belichtet.

Eine der verwendeten Masken ist in Abbildung 5.5 zu sehen. Um sicherzustellen, dass sich die Volumenkörper bei der späteren Belichtung durch die Zwei-Photonen-Polymerisation an der richtigen Stelle im Halter befinden, wird die Maske zur Probe so orientiert, dass die Justagemarker (in den Abbildun-





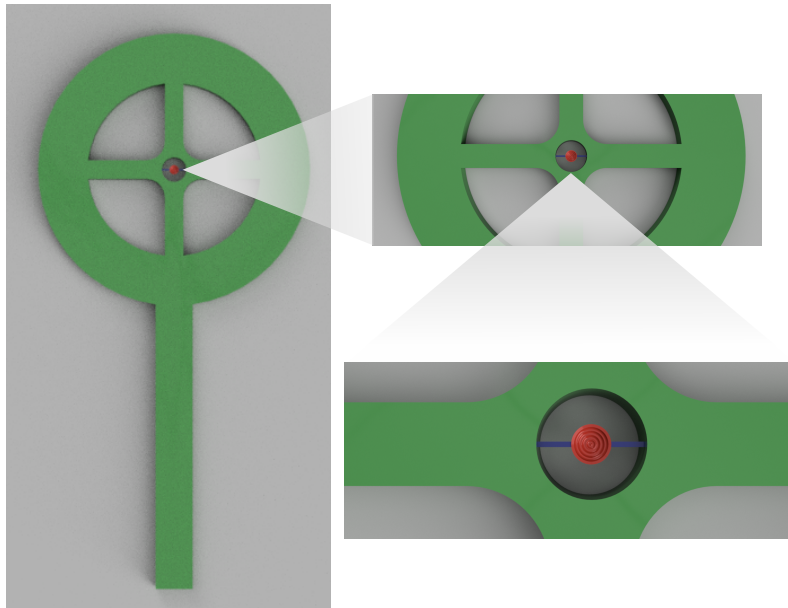
**Abbildung 5.6:** Kupfer-Opferschicht auf einem *FR-4* Wafer. Die Probe wurde bereits belichtet und entwickelt. Der obere vergrößerte Bildausschnitt zeigt einen Justagemarker (schwarz), der eine Position für die Zwei-Photonen-Polymerisation markiert. Das Teilbild unten rechts zeigt eine Haltestruktur, die sich noch auf dem Substrat befindet. Hergestellt von R. Dörr (EMK).

gen 5.4 und 5.5 blau markiert) exakt übereinander liegen. Die Probe wird nach dem Ausrichten mit etwa  $5,7 \text{ J/cm}^2$  belichtet [101].

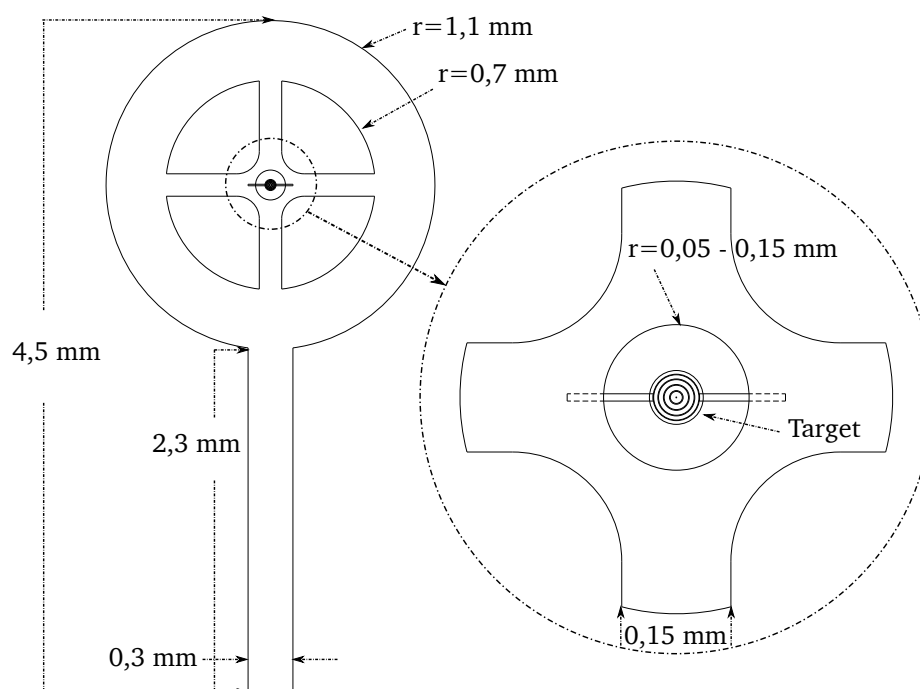
Das Design der Haltestruktur beruht auf der Zusammenarbeit mit W. Krüger [101], der diese im Zuge seiner Bachelorarbeit untersucht hat. Die Ausmaße der Haltestruktur sollen groß genug sein, um das Target handhaben zu können, zeitgleich aber möglichst filigran sein, um wenig Schrapnelle im Experiment zu erzeugen. Um dies zu erreichen besteht die Halterung aus zwei konzentrischen Ringen, die durch dünne Stege miteinander verbunden sind. Der innere Ring beherbergt das Target, der äußere ist mit einem Haltestab zur späteren Befestigung im Experiment verbunden. Dimension und Form dieser Haltestäbe spielen eine untergeordnete Rolle und können an die Target-Haltevorrichtung im späteren experimentellen Aufbau angepasst werden. Es muss jedoch auf eine ausreichende Stabilität geachtet werden. Die drei Strukturen unten links auf der Maske in Abbildung 5.5 weisen zum Beispiel eine Schwachstelle beim Übergang des Haltestabs an den äußeren Ring auf. An dieser Stelle kam es beim Ablösen der Strukturen vom Substrat vermehrt zu Bruchstellen. Bei den anderen abgebildeten Formen gibt es keine besonderen Präferenzen.

Der Durchmesser des inneren Rings wurde zwischen  $100 \mu\text{m}$  und  $300 \mu\text{m}$  variiert. Ein zu kleiner Durchmesser führt zu Problemen bei der Entwicklung, da das Target eine zu große Fläche abdeckt und so der Bereich unterhalb des Targets schlecht von der Entwicklerflüssigkeit umspült wird. Bei einem zu großen Durchmesser müssen die Haltestege sehr lang werden, was zu Instabilitäten führen kann. Die Spannweite der Haltestege wird  $50 \mu\text{m}$  größer als der Lochdurchmesser gewählt, um einen Überlapp der Zwei-Photonen-Polymerisations-Struktur mit der Haltestruktur zu gewährleisten. Im Verlauf der Experimente hat sich herausgestellt, dass auch der  $300 \mu\text{m}$  Lochdurchmesser keine Stabilitätsprobleme verursacht, jedoch erhöht sich durch längere Haltestege die Prozesszeit der Zwei-Photonen-Polymerisation. Beim Design einer Haltestruktur kann die Ringgröße an die experimentellen Begebenheiten angepasst werden. Ein größerer Ringdurchmesser erleichtert die Entwicklung und sorgt für mehr Freiraum um das Target („mass-limited targets“).

Eine schematische Darstellung der Haltestruktur und der Lage des Targets innerhalb der Struktur ist in Abbildung 5.7 zu sehen. Die Ausmaße der einzelnen Komponenten sind der Zeichnung in Abbildung 5.8 zu entnehmen.



**Abbildung 5.7:** Modell der Haltestruktur mit innen liegendem Target. Die Haltestruktur, die mittels UV-Lithographie hergestellt wird, ist grün dargestellt. Die Targetstruktur für die Zwei-Photonen-Polymerisation ist zweiteilig aufgebaut. Die blau dargestellten Haltestege werden mit geringerer Auflösung hergestellt, als das eigentliche, in rot dargestellte, Target.



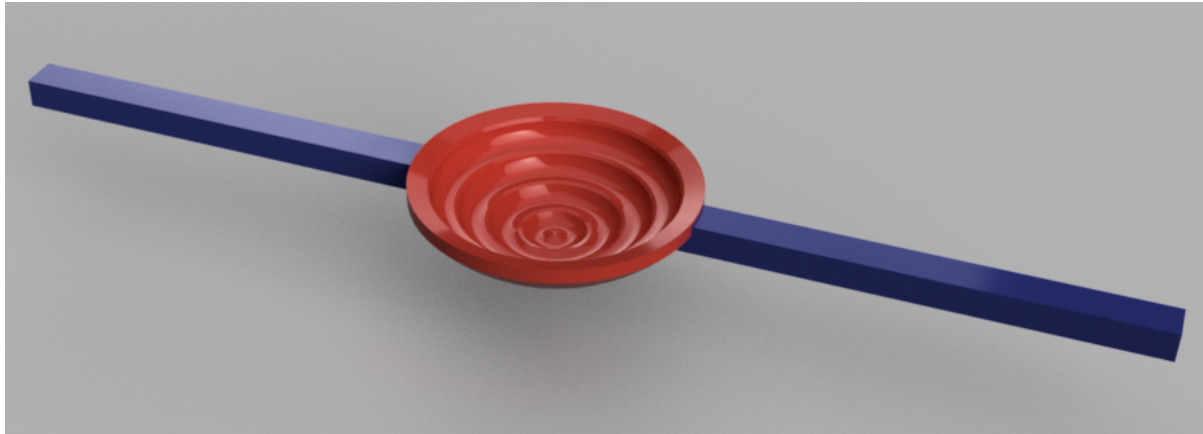
**Abbildung 5.8:** Dimensionen der UV-lithographisch hergestellten Haltestruktur. Sie muss das Target handhabbar machen, sollte aber trotzdem möglichst filigran sein.

---

## 5.3 Zwei-Photonen-Polymerisation

---

Nachdem das Ausgangsmaterial vorbereitet ist und die Haltestrukturen mittels Belichtungsmaske und UV-Lithographie belichtet wurde, kann die 3D-Freiform mittels Zwei-Photonen-Polymerisation in den Lack geschrieben werden. Dazu wird der Glasträger im Aufbau entsprechend Unterkapitel 4.2 platziert. Die Geometrie, die erzeugt werden soll, muss zunächst in einem beliebigen CAD-Programm, zum Beispiel *Autodesk, Fusion 360* konstruiert und im \*.stl-Format (ASCII) gespeichert werden (siehe dazu Kapitel 4.3). Ein solches Modell ist in Abbildung 5.9 anhand einer Hemisphere mit inliegender, sinusförmiger Mikrostruktur beispielhaft gezeigt. Die Hintergründe zu diesem Targetdesign werden in Unterkapitel 6.1 erläutert.



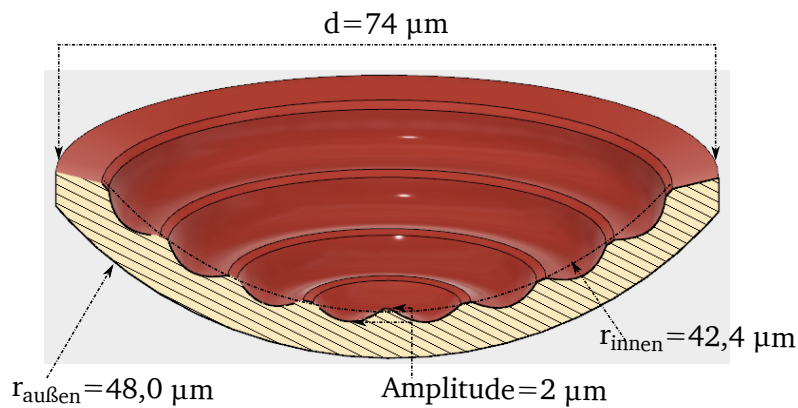
**Abbildung 5.9:** Beispiel einer im CAD-Programm konstruierten und als \*.stl-Datei exportierten Geometrie. In rot dargestellt ist das eigentliche Target. Die blauen Haltestege dienen der Befestigung des Targets in der Haltestruktur. Beide Komponenten werden mittels Zwei-Photonen-Polymerisation belichtet. Die farbliche Darstellung in der Konstruktion des Targets dient nur der Anschauung in dieser Arbeit und spielt für die Verarbeitung im Experiment keine Rolle (siehe dazu Unterkapitel 4.3).

Da das eigentliche Target, in Abbildung 5.9 rot dargestellt, mit dem inneren Ring der Haltestruktur verbunden sein muss, so wie auf den Abbildungen 5.7 und 5.8 zu sehen ist, benötigt es Stege (in Abbildung 5.9 blau). Diese Stege haben eine Spannweite von insgesamt  $300\text{ }\mu\text{m}$  und einen Querschnitt von  $10\text{ }\mu\text{m} \times 10\text{ }\mu\text{m}$ . Zwischen den beiden Stegen befindet sich eine Aussparung für das Target. Auch hier ist die Dimensionierung so gewählt, dass ein Überlapp zwischen den Stegen und dem Target sichergestellt ist. Die Maße des Targets sind in Abbildung 5.10 zu finden. Das Target entspricht dem um den Faktor vier vergrößerten Target aus der Simulation von Unterkapitel 6.1. Die Sinus-Modulation entsteht aus der Überlagerung von zwei, um  $\pi/2$  zueinander phasenverschobenen Sinusschwingungen. Die Amplitude der Schwingungen beträgt  $2,5\text{ }\mu\text{m}$ . Auf dem Vollkreis befinden sich 15 Schwingungen.

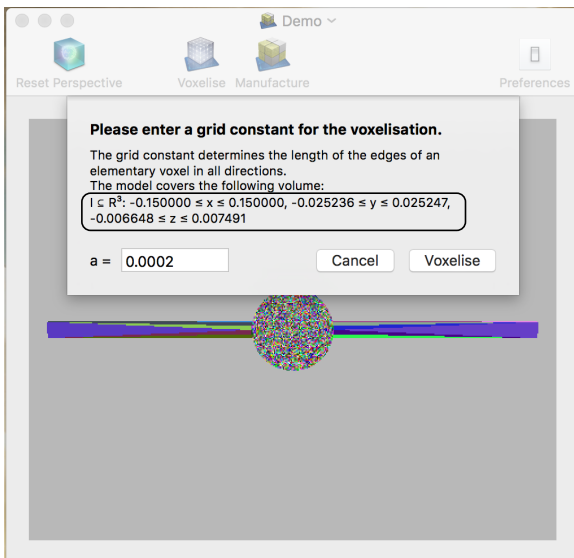
Sowohl das Target als auch die Haltestege werden mittels Zwei-Photonen-Polymerisation belichtet. Es ist möglich beides als eine Struktur zu verarbeiten, oder als zwei getrennte Objekte. Haltestege und Target zu trennen bringt den Vorteil mit sich, dass unterschiedliche Belichtungsparameter verwendet werden können. So kann durch eine geringe Auflösung der Stege Zeit bei der Belichtung eingespart werden.

Die Darstellung der einzelnen Komponenten in unterschiedlichen Farben dient einzig der Veranschaulichung im Rahmen dieser Arbeit. Für den tatsächlichen Herstellungsprozess spielt die Farbe der Konstruktion im CAD-Programm keine Rolle (Das \*.stl-Format ist nicht farbselektiv. Siehe dazu Unterkapitel 4.3).

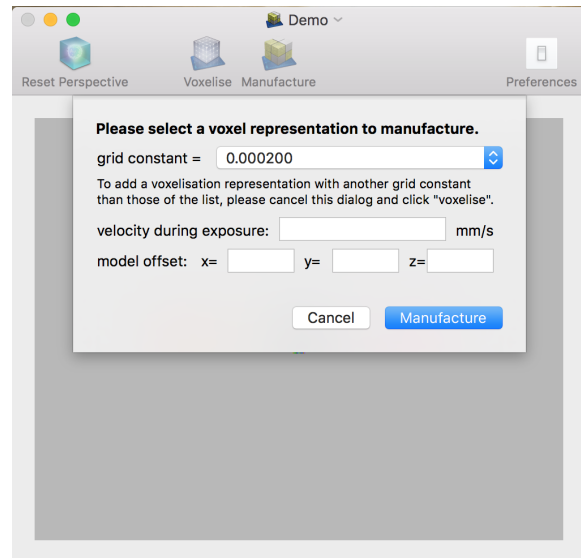
Bevor die \*.stl-Struktur belichtet werden kann, wird sie in die eigens dafür entwickelten Software *2PP-Utility* [75] (siehe Unterkapitel 4.3) in Voxel zerlegt. Die Benutzeroberflächen zum Hochladen und Voxelisieren sind in Abbildung 5.11 dargestellt.



**Abbildung 5.10:** Querschnitt durch ein Target mit Dimensionsangaben. In der Hemisphere ist die sinusförmige Mikromodulation zu erkennen. Die Konstruktion entspricht dem simulierten Target aus Unterkapitel 6.1 (Abbildung 6.2) mit vierfacher Größe.



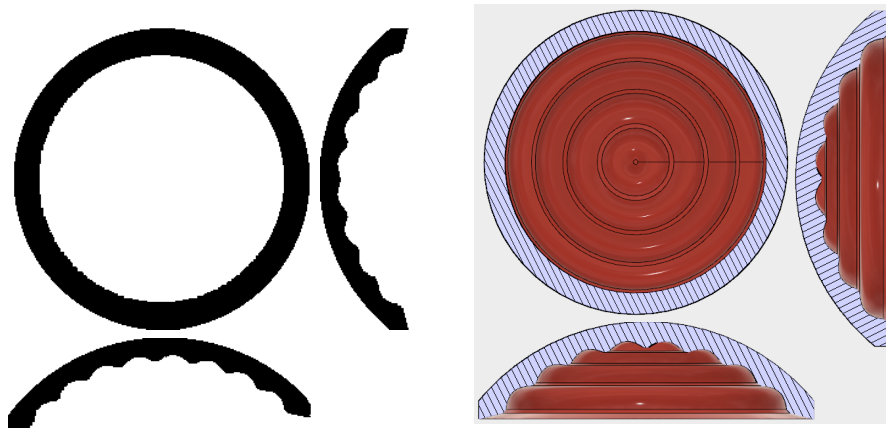
**Abbildung 5.11:** Benutzeroberfläche der 2PP-Utility zum Voxelisieren der Struktur. Als Parameter wird die gewünschte Voxelgröße in Millimetern angegeben. Hier wird der Körper in  $a = 200 \text{ nm}$  Voxel zerlegt. Außerdem werden zur Überprüfung die Abmaße der Bounding Box (siehe Unterkapitel 4.3) angezeigt (schwarzer Kasten).



**Abbildung 5.12:** Um die Belichtung zu starten, muss in der Software die passende Voxelisierung ausgewählt werden. Außerdem erwartet das Programm eine Eingabe für die Geschwindigkeit und die Koordinaten (x,y,z) des Startpunktes.

Um etwaige Fehler bei der Voxelisierung auszuschließen, können die Bilder der einzelnen Ebenen mit Hilfe eines Bildbearbeitungsprogramms, wie zum Beispiel ImageJ, zusammengesetzt werden. Anhand eines Schnittes durch die gestapelte Bildsequenz, also das rekonstruierte Target, kann die Geometrie anschließend kontrolliert werden. Ein solches Kontrollbild ist in Abbildung 5.13 dargestellt.

Nach dem Anfahren der entsprechenden Markierung (inneren Ring der Haltestruktur oder Opferschicht-Aussparung, wie in Unterkapitel 5.1 erläutert) wird der Abstand von Probe und Objektiv (hier die z-Achse) so eingestellt, dass die Oberfläche unter der Lackschicht, also die Opferschicht oder die Glasoberfläche, scharf abgebildet wird. Da die Kamera so eingestellt ist, dass der Schärfepunkt der Abbil-



**Abbildung 5.13:** Mit dem Bildbearbeitungsprogramm ImageJ wurden die Bilder der einzelnen Ebenen, die durch die Voxelisierung entstanden sind, gestapelt und sowohl ein horizontaler als auch ein vertikaler Schnitt durch die so rekonstruierte Geometrie gelegt. Diese Bilder sind links, in schwarz zu sehen. Auf der rechten Seite sind zum Vergleich entsprechende Schnitte (blau-weiß gestreift) durch das Target zu sehen. Da die Rekonstruktion mit der Ausgangsgeometrie übereinstimmt, war die Zerlegung fehlerfrei.

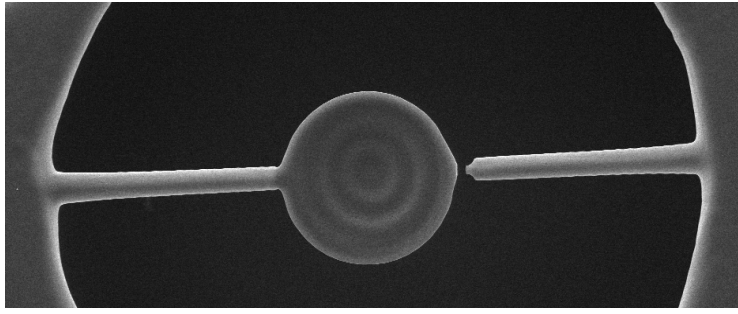
dung mit dem Laserfokus übereinstimmt, kann so sichergestellt werden, wo sich der Laserfokus befindet. Durch einen Versatz in z-Richtung kann anschließend die Ebene gewählt werden, von der ausgehend die Geometrie im Photolack belichtet werden soll. Die so gewählten x-, y- und z-Koordinaten werden über das Webinterface der Motoren ausgelesen und zur Belichtung in die Benutzeroberfläche der *2PP-Utility* übertragen. Um die Belichtung starten zu können, muss zuvor noch eine Voxelisierung („grid constant“) ausgewählt und die gewünschte Geschwindigkeit („velocity during exposure“) eingetragen werden. Die verwendete Laserleistung wird über die Schalteinheit (siehe Unterkapitel 4.1), unabhängig von der Software eingestellt. Die Auswirkungen dieser Parameter auf den Prozess sind in Abschnitt 3.3.3 beschrieben. Die Benutzeroberfläche der Steuersoftware zu diesem Arbeitsschritt ist in Abbildung 5.12 dargestellt.

#### 5.4 Entwickeln der belichteten Strukturen und Ablösen vom Substrat

Nachdem sowohl die Haltestrukturen mit UV-Lithographie als auch die Target-Geometrie mit Zwei-Photonen-Polymerisation belichtet wurden, wird die Probe entwickelt. Dazu wird diese in einem Bad aus Entwickler so lange geschwenkt, bis der restliche, nicht belichtete Photolack entfernt ist. Bei den  $20\text{ mm} \times 20\text{ mm}$  Proben aus *AZ125nXt*-Lack auf Glas dauert dieser Prozess etwa 15 min. Diese Zeitspanne ist im Vergleich zu den Herstellerangaben (etwa 3 min [102]) lange. Maßgeblich ist jedoch, dass der gesamte unbelichtete Lack weggespült wird. Dies wird in regelmäßigen Abständen unter einem Mikroskop mit Gelblicht-Beleuchtung kontrolliert. Die Entwicklung des *SU-8*-Lacks läuft äquivalent ab. Besonders Augenmerk muss beim Entwickeln auf den inneren Ring der Haltestruktur mit dem Target gelegt werden. Aufgrund des Aspektverhältnisses dieses Lochs ( $(100\text{--}300)\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser bei etwa  $120\text{ }\mu\text{m}$  Tiefe) ist die Entwicklung schwierig, da das Loch nicht gut von dem Entwickler durchspült wird. Dies wird noch dadurch erschwert, dass das Target mit seinen Haltestegen einen Großteil des Lochs abdeckt. Wird die Probe zu lange entwickelt, kommt es durch erhöhten Dunkelabtrag zur Zerstörung feiner Strukturen, bis hin zum Abreißen der Haltestege am Target (siehe dazu auch Unterkapitel 3.4). Ein Beispiel für ein solches beschädigtes Target ist an Abbildung 5.14 zu sehen.

Es hat sich gezeigt, dass sich die mechanischen und chemischen Eigenschaften der beiden verwendeten Lackarten erheblich voneinander unterscheiden. Während der *AZ125nXt*-Lack eher elastisch ist, bildet der *SU-8*-Lack harte, formstabile Strukturen mit wenig Flexibilität.





**Abbildung 5.14:** Raster-Elektronen-Mikroskop-Aufnahme eines Targets mit angebrochenem Haltesteg.

Die unterschiedlichen chemischen Eigenschaften kommen beim Ablösen der fertig entwickelten Strukturen vom Substrat zum Tragen. Eine sehr einfache aber dennoch zuverlässige Möglichkeit eine kleine Struktur aus *SU-8*-Lack von der Kupferschicht zu lösen, besteht darin, sie mit etwas Aceton zu benetzen. Nach wenigen Augenblicken lässt sie die Struktur dann mit leichter, mechanischer Einwirkung vom Kupfer lösen. Befindet sich während dessen immer noch flüssiges Aceton auf dem Substrat, verhindert es, dass die Struktur weg fliegt. Mit diesem Verfahren können die Strukturen selektiv, schnell und schonend abgelöst werden.

Das Ablösen mithilfe von Aceton ist bei der Verwendung von *AZ125nXt*-Lack nicht möglich, da sich dieser Lack unter der Einwirkung des Lösemittels auflöst. Gleiches gilt für Isopropylalkohol. Um diese Strukturen abzulösen muss also die Opferschicht entfernt werden. Dazu dient ein Ätzmittel<sup>15</sup>, welches zwar die metallische Schicht entfernt, das Polymer jedoch nicht zerstört. Dieser Vorgang kann einige Stunden dauern, da eine zu hohe Ätzrate zur Blasenbildung und damit zur Zerstörung der feinen Targetstrukturen führen kann.

---

<sup>15</sup> TechniEtch AL 80 MOS, TECHNIC France

---

## 6 Anwendungsbeispiel eines Zwei-Photonen-Polymerisations-Targets für die Laser-Ionen-Beschleunigung

Das folgende Kapitel beschreibt die Verwendung eines Zwei-Photonen-Polymerisations-Targets anhand eines spezifischen Beispiels. Das Design des Targets sowie eine Simulation, die das Verhalten dieser Geometrie beim TNSA-Prozess zeigt, werden in Unterkapitel 6.1 vorgestellt. Darauf aufbauend wird in Unterkapitel 6.2 die Herstellung der simulierten Geometrie und die Charakterisierung des fertigen Targets im Detail beschrieben. Das letzte Unterkapitel 6.3 behandelt die Verwendung dieses spezifischen Targets in einem Experiment zur Laser-Ionen-Beschleunigung.

---

### 6.1 Targetdesign und Simulation

---

Durch das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute System zur Erzeugung von Targets mittels Zwei-Photonen-Polymerisation können dreidimensionale Freiform-Targets gefertigt werden. Die vielfältigen Anwendungsmöglichkeiten solcher 3D-Targets werden in Unterkapitel 2.4 aufgezeigt.

So ist es zum Beispiel möglich, mit einem hemispherischen Target mit Rückseitenmodulation (innenliegend) im Experiment die Fokussierung eines lasergetriebenen Ionenstrahls zu untersuchen.

Abbildung 6.1 zeigt eine *particle-in-cell*-Simulation<sup>16</sup> (kurz **PIC**) eines solchen Targets. Das Target besteht in dieser 2D-EPOCH-Simulation [103] aus  $C_{10}H_{10}O_2$ , was in erster Näherung dem tatsächlichen Targetmaterial entspricht. Das Simulationsfenster ist  $40\text{ }\mu\text{m} \times 20\text{ }\mu\text{m}$  groß und in  $8000\text{ Zellen} \times 4096\text{ Zellen}$  aufgeteilt, in denen sich jeweils 15 Teilchen befinden. Die Simulation startet mit einem gaußförmigen Vorplasma und geht von einer 1-fachen Ionisation der Teilchen aus. Die grün dargestellte Kontaminationsschicht (Abbildung 6.1, linkes Bild) hat eine Dicke von 25 nm. Die Größe und die Auflösung des Simulationsfensters sind ausreichend für eine Designstudie mit dem Ziel, den Einfluss der Targetgeometrie auf die Dichteverteilung der Ionen im Teilchenstrahl zu untersuchen. Gleichzeitig kann damit der Zeitaufwand der Simulation umsetzbar gehalten werden.

In der Simulation wird zur Ionenbeschleunigung ein Laserpuls mit einer Intensität von  $1 \cdot 10^{19}\text{ W/cm}^2$ , bei einer Pulsdauer von 30 fs und einer Wellenlänge von  $1,06\text{ }\mu\text{m}$  verwendet.

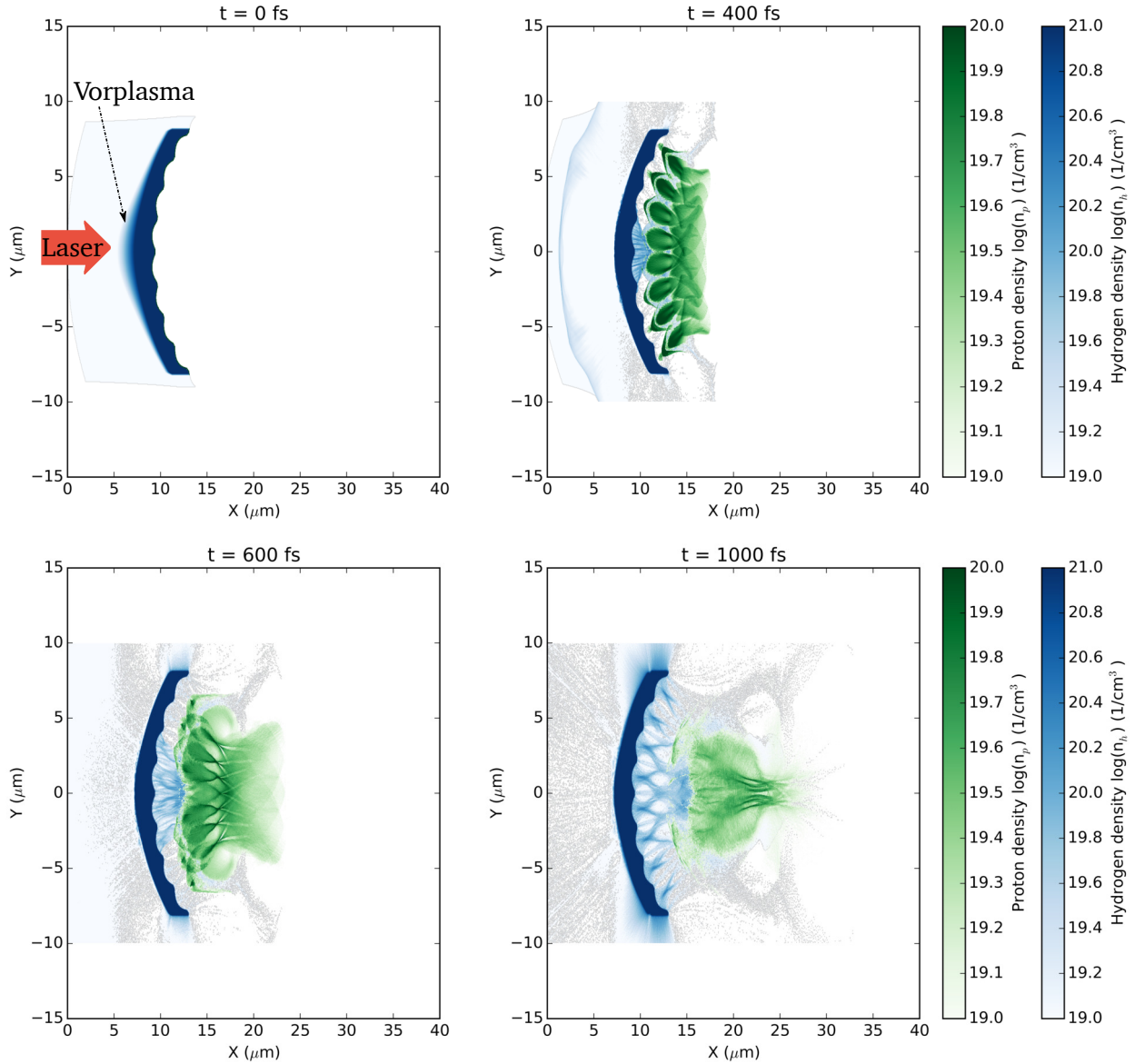
Wie erwartet, ist eine Aufprägung der Rückseitenmodulation in der Dichteverteilung der beschleunigten Teilchen zu erkennen. Gleichzeitig kommt es durch die hemispherische Form zur Fokussierung der beschleunigten Teilchen.

Das Design des in den folgenden Unterkapiteln gezeigten Beispieltargets beruht auf dieser Simulation. Um die Simulationszeit zu reduzieren, ist das simulierte Target um einen Faktor vier kleiner als das produzierte Target (siehe Unterkapitel 5.3). Die Maße des simulierten Targets sind in der Designskizze in Abbildung 6.2 eingetragen.

Der Außenradius der Hemisphere beträgt  $r_{\text{außen}} = 12\text{ }\mu\text{m}$ . Die sinusförmige Mikrostruktur entsteht durch die Überlagerung von zwei, um  $\pi/2$  zueinander verschobenen Sinusfunktionen auf einem Kreis mit Radius  $r_{\text{Sinus}} = 10,5\text{ }\mu\text{m}$ . Die Amplitude der Sinusfunktionen beträgt  $0,5\text{ }\mu\text{m}$ . Auf einem Vollkreis befinden sich 15 Schwingungen. Die innere Sinushalbschwingung wird bei einem Radius von  $r_{\text{innen}} = 10,6\text{ }\mu\text{m}$  abgeschnitten. Aus dieser Konstruktion wird ein Ausschnitt mit einem Durchmesser von  $16\text{ }\mu\text{m}$  gewählt. Auf diese Weise entsteht der in Abbildung 6.2 blau markierte Bereich als Targetgeometrie.

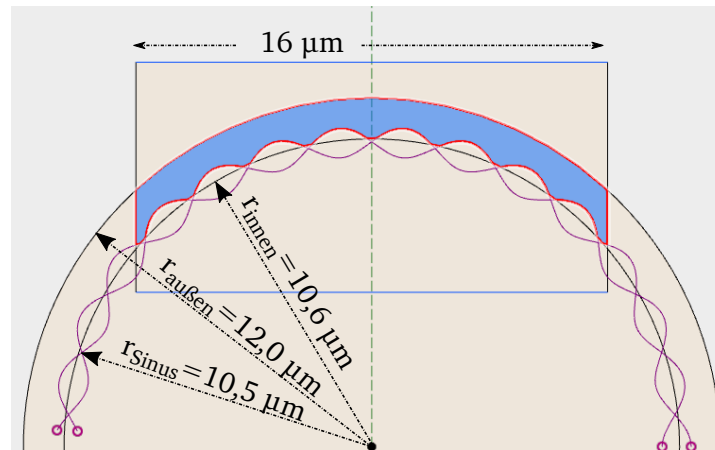
---

<sup>16</sup> angefertigt von T. Ebert, AG M. Roth, TU-Darmstadt; A. Kleinschmidt, J. Hornung, GSI/Helmholz-Institut Jena



**Abbildung 6.1:** 2D-PIC-Simulation<sup>16</sup> eines hemispherischen Targets mit innenliegender, sinusförmiger Modulation. Die Protonen des Targetmaterials  $\text{C}_{10}\text{H}_{10}\text{O}_2$  sind blau, die der Kontaminationsschicht grün dargestellt. Zu sehen sind vier Zeitschritte  $t_1 = 0$  fs,  $t_2 = 400$  fs,  $t_3 = 600$  fs und  $t_4 = 1000$  fs. Die Parameter der Simulation können dem Text entnommen werden.





**Abbildung 6.2:** Konstruktion eines hemisphärischen Targets mit innenliegender sinusförmiger Modulation. Die Modulation der Targetgeometrie (blau) entsteht aus der phasenverschobenen Überlagerung von zwei Sinusfunktionen mit gleicher Amplitude und Frequenz.

## 6.2 Herstellung und Charakterisierung

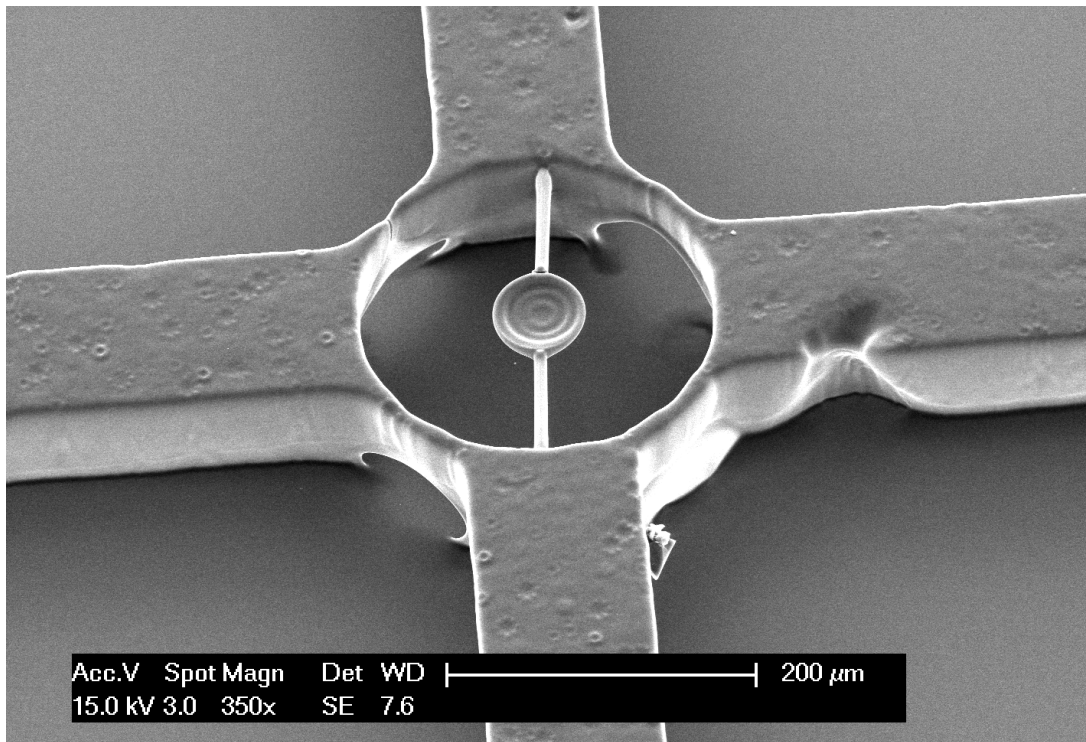
Das in Unterkapitel 6.1 beschriebene Targetdesign wurde anhand des in Kapitel 5 dargestellten Gesamtprozesses hergestellt. Abbildung 6.3 zeigt eine Raster-Elektronen-Mikroskop-Aufnahme des fertiggestellten Targets. Zur Anfertigung solcher Aufnahme muss das Target zunächst metallisch beschichtet werden. In diesem Fall wurde es mit Kupfer besputtert (8 min, 45 mA, 35 mm Abstand zwischen Probe und Sputterdisk).

Die Aufnahme zeigt den inneren Ring der Haltestruktur mit dem Target in der Mitte. Wie bereits diskutiert, wurde die Haltestruktur (Abbildung 5.8) mittels klassischer UV-Lithographie belichtet. Die Haltestege, die das Target im Ring halten, sind durch Zwei-Photonen-Polymerisation erzeugt worden. Dabei betrug die Auflösung der Voxelisierung 350 nm. Zur Belichtung wurde die Probe mit 1,3 mm/s bewegt und eine Durchschnittsleistung von 28 mW eingebracht (weitere Details zum Lasersystem können Unterkapitel 4.1 entnommen werden).

Da bei dem Target selbst eine bessere Auflösung angestrebt wird, wurde dieses mit einer Voxelgröße von 300 nm zerlegt. Die Probe wurde bei einer verwendeten Lichtleistung von 16 mW mit 1,2 mm/s bewegt. Der Zusammenhang zwischen den einstellbaren Parametern und der Voxelgröße wird in Kapitel 3 erörtert.

In einer Aufnahme mit höherer Vergrößerung in Abbildung 6.4 ist zu erkennen, dass der innere Ring der Haltestruktur nach unten, zur Glasfläche hin, Löcher aufweist. Da die Streben der Haltestruktur komplett durchbelichtet sind, es also keine Lücke zum Glas hin zu geben scheint, ist eine zu geringe Belichtungs-dosis unwahrscheinlich. Aufgrund der Tatsache, dass die Proben mit einer Entwicklungsdauer von 15 min vergleichsweise lange entwickelt wurden, ist es denkbar, dass diese Löcher Anzeichen einer Überentwicklung (Dunkelabtrag) sind. Die hohe Entwicklungsdauer ist jedoch notwendig, um die feinen Strukturen im inneren Ring von unbelichtetem Photolack frei zu bekommen, wie bereits in Unterkapitel 5.4 erwähnt.

Die Targetform als solche ist klar zu erkennen. Sowohl die hemisphärische Außenform, als auch die sinusförmige Mikrostruktur innen sind deutlich sichtbar. Jedoch scheint die Sinusstruktur nicht vollständig scharf abgegrenzt zu sein. Eine unerwünschte Schicht Photolack auf der Targetinnenseite kann verschiedene Ursachen haben. Zum einen kann sie durch das unkontrollierte Belichten von Bereichen außerhalb des eigentlichen Targetvolumens zustande kommen, zum anderen aber auch durch ein unvollständiges Entwickeln einer korrekt belichteten Probe.

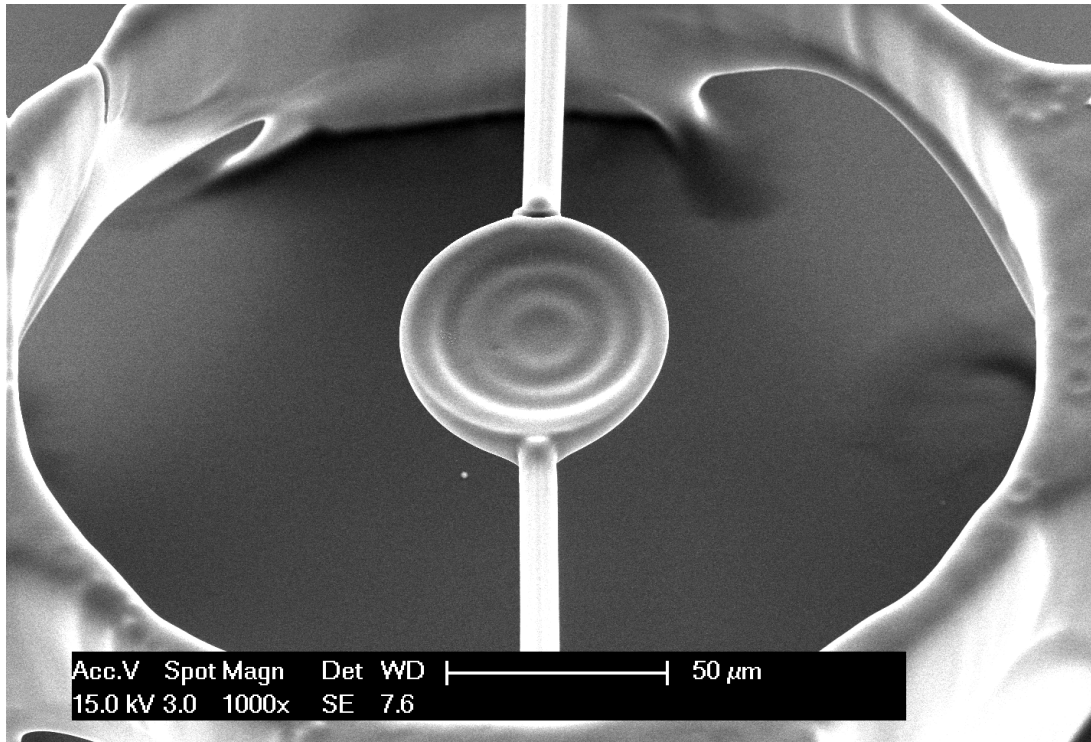


**Abbildung 6.3:** Raster-Elektronen-Mikroskop-Aufnahme eines mit Kupfer besputterten Targets im inneren Ring der Haltestruktur bei 350-facher Vergrößerung. Die Parameter der Herstellung sind dem Text zu entnehmen.

Ein unvollständiges Entwickeln ist denkbar, da sich das Target in einer schmalen Röhre befindet, innerhalb derer die Durchmischung mit Entwicklerflüssigkeit schwierig ist. Auch die konkave Form des Targets erschwert die ausreichende Spülung mit frischem Entwickler.

Ist der Photolack außerhalb der eigentlichen Geometrie belichtet, kann dies auf eine unzureichende Auflösung während des Zwei-Photonen-Polymerisations-Prozesses hindeuten. Die Auflösung ist, wie in Unterkapitel 3.3 dargelegt, von einer Reihe unterschiedlicher Parameter abhängig. Neben den festen Randbedingungen, wie der Numerischen Apertur des verwendeten Objektivs, der Pulslänge sowie der Zentralwellenlänge und spektralen Breite des verwendeten Lasers, spielen vor allem die für jeden Belichtungsprozess individuell einstellbaren Parameter eine maßgebliche Rolle. Zu diesen gehören die Geschwindigkeit, mit der die Probe abgerastert wird, die mittlere verwendete Laserleistung und die Voxelgröße bei der Zerlegung der Struktur. Es ist zu beachten, dass nicht nur jeder Parameter allein die Belichtung beeinflusst, sondern dass das gesamte Parameterset aufeinander abgestimmt sein muss.

Eine weitere Entwicklungsreihe zur integrierten Herstellung von Zwei-Photonen-Polymerisations-Targets in einer UV-belichteten Haltestruktur fand im Rahmen des **FiF** Projektes **JUMP** statt, bei dem es um „Hochintegrierte aktiv Justierbare Lasertargets zur Untersuchung von Materie im Plasmazustand“ geht. Um dies zu realisieren, dienen die Haltestrukturen als elektrothermische-Mikro-Positionierplattformen, mithilfe derer in späteren Experimenten das Target präzise ausgerichtet werden kann. Die bei **JUMP** verwendeten Plattformen basieren auf dem Design von C. Nakic [104]. Die Eigenschaften der Probe sind in Unterkapitel 5.1 zu finden. Abbildung 6.5 zeigt ein hemisphärisches Target mit sinusförmiger Modulation. Das Target der Abbildung ist bereits entwickelt. Im Zuge weiterer, für die elektrothermischen-Positionierplattformen notwendigen Arbeitsschritte, wurde das gezeigte Target am **EMK** mit Kupfer metallisiert.



**Abbildung 6.4:** Raster-Elektronen-Mikroskop-Aufnahme eines Zwei-Photonen-Polymerisations-Targets bei 1000-facher Vergrößerung. Die innere Mikromodulation ist deutlich zu erkennen. Auffällig sind die Lücken zwischen dem Ring der Haltestruktur und dem Substrat.



**Abbildung 6.5:** Metallisiertes Target in einer elektrothermischen-Mikro-Positionierplattform. Entstanden in Kooperation mit dem Institut für Elektromechanische Konstruktionen, **EMK** im Rahmen von **JUMP**.

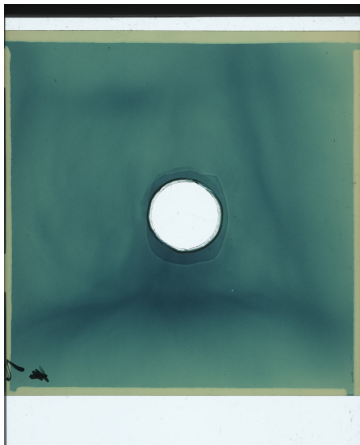


### 6.3 Verwendung im Experiment

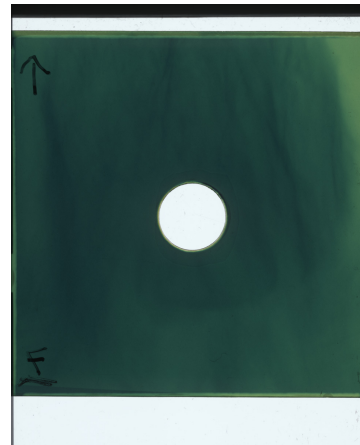
Im Rahmen einer internen Strahlzeit am Petawatt-Hochenergie-Laser für Schwerionenexperimente, **PHELIX**, am Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung in Darmstadt, **GSI**, wurde im März 2018, ein hemisphärisches Target mit Rückseitenmodulation (wie in den vorangegangenen Kapiteln beschrieben) eingesetzt. Bei dem Experiment zur Teilchenbeschleunigung durch TNSA wurde das Target mit einer Laserenergie von etwa 130 J bei einem Fokusbereich von 6  $\mu\text{m}$  (FWHM) beschossen.

Zur Detektion der beschleunigten Teilchen kamen radiochromatische Filme in Stapelkonfiguration zum Einsatz. Solche Dosimetriefilme (engl. *radiochromic film*, kurz **RCF**) zeigen die deponierte Energiedosis ionisierender Strahlung durch eine Farbänderung an. Die Färbung der Filme in den Abbildungen 6.6 und 6.7 zeigt demzufolge, dass der Laser mit einer Zentralwellenlänge von 1053 nm und einer Pulslänge von 500 fs aus dem Target Teilchen beschleunigt hat. Durch das Stapeln mehrerer Filme, die zusätzlich durch metallische Folien voneinander getrennt sind, kann neben dem räumlichen Profil eine Energieauflösung erreicht werden. Die Färbung in Abbildung 6.6 entspricht einer Teilchenenergie von 5,5 MeV, während Abbildung 6.7 eine Teilchenenergie von 19,8 MeV abbildet. Im Experiment stand der Filmstapel 10,8 cm vom Target entfernt.

Es konnte somit gezeigt werden, dass die Adaption der Zwei-Photonen-Polymerisation als Methode für die Targetproduktion funktioniert, der Umgang mit den kleinen Strukturen dank der entwickelten Haltestruktur möglich ist und auch die geringe Größe der eigentlichen Targetgeometrie gut im Experiment funktioniert.



**Abbildung 6.6:** Erste Folie des RCF-Stapels. Die Färbung entspricht einer Teilchenenergie von 5,5 MeV.



**Abbildung 6.7:** Siebte und letzte Folie des RCF-Stapels. Die Färbung entspricht einer Teilchenenergie von 19,8 MeV.

In der Diagnostik ist kein streifenförmiges Profil der beschleunigten Teilchen zu sehen, was auf unterschiedliche Ursachen zurückgeführt werden kann. So wäre es möglich, dass die sinusförmige Modulation im Inneren der Hemisphere nicht ausreichend ausgeprägt war. Dies kann, wie in Unterkapitel 6.2 erläutert, an der Auflösung des Prozesses oder an einer unzureichenden Entwicklung der Struktur liegen.

Außerdem haben verschiedene Simulationen gezeigt, dass die Streifenbildung einer solchen Targetgeometrie sehr von Form, Amplitude und Wellenlänge der inneren Modulation abhängt. Auch der Abstand der Diagnostik vom Target kann bei der Detektion einer solchen Dichtemodulation der beschleunigten Targets eine Rolle spielen. Es ist zum Beispiel nicht hinreichend bekannt, wie die Form des Teilchenstrahls durch die Fokussierung beeinflusst wird. Diese Tatsache stellt gleichzeitig aber auch ein interessantes Anwendungsgebiet für Zwei-Photonen-Polymerisations-Targets dar. Mit dieser Technik ist es möglich, unsymmetrische Targets herzustellen. Unter der Voraussetzung, dass die innere Struktur abgebildet wird, ist es unter Umständen möglich, durch einen Symmetriebruch im Target zu sehen, ob sich die Teilchen

---

im Fokus des Teilchenstrahls kreuzen oder sich aber entlang einer Art Gaußtaille bewegen.

Insgesamt konnte also gezeigt werden, dass durch Zwei-Photonen-Polymerisation hergestellte Targets sehr großes Potential im Bereich der Laser-Ionen-Beschleunigung bergen. Mit dem aktuellen Stand des experimentellen Aufbaus können nun diverse Freiformen hergestellt werden, um die Facetten der Hochenergielaser-Materie-Wechselwirkung weiter zu ergründen.



---

## 7 Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Implementierung und der Charakterisierung eines Aufbaus zur Erzeugung von dreidimensionalen Freiformtargets für die Laser-Ionen-Beschleunigung mittels Zwei-Photonen-Polymerisation, sowie der Erarbeitung der dazu notwendigen Prozesskette. Durch die stetige Weiterentwicklung der Experimente im Bereich der Laser-Materie-Wechselwirkung steigt auch der Bedarf an komplexen dreidimensionalen Targets. Während einfache geometrische Formen gut durch klassisch mechanische Herstellungsverfahren wie Drehen und Fräsen produziert werden können, stoßen solche Verfahren bei dreidimensionalen Freiformen mit Strukturgrößen im Mikrometerbereich an ihre Grenzen. Genau in diesem Bereich liegen hingegen die Stärken der Zwei-Photonen-Polymerisation.

Die Zwei-Photonen-Polymerisation ist ein lithographischer Prozess, der auf der Polymerisation von Photolack basiert. Im Gegensatz zur klassischen UV-Lithographie wird hierbei allerdings nicht die gesamte Probe, mithilfe einer Belichtungsmaske, in einem Durchgang belichtet, sondern nacheinander kleinste Raumbereiche, welche als Voxel bezeichnet werden. Durch das Abrastern eines Volumens kann so ein dreidimensionaler Körper erzeugt werden. Das Zerlegen der Geometrie in einzelne Voxel und das damit verbundene Erstellen eines Fahrtweges wird von der eigens zu diesem Zweck entwickelten Software *2PP-Utility* geleistet. Um die Handhabung der wenige  $\mu\text{m}^3$  großen Targetstrukturen zu ermöglichen, bedarf es einer Haltestruktur. Im Rahmen dieser Arbeit wurde aus diesem Grund eine Kombination aus Zwei-Photonen-Polymerisation und UV-Lithographie für die Erzeugung von Targets, respektive Haltestruktur, realisiert. Da beide Methoden auf die gleiche Probe angewendet werden können, ist so eine integrierte Herstellung der Targets in der Haltestruktur möglich. Diese Integration reduziert die Produktionszeit eines Targets samt Haltestruktur erheblich.

Im Verlauf der Arbeit wurden zwei verschiedene Probenarten verwendet, welche sich in der Art des Photolacks, Substrats und ihrer Opferschicht unterscheiden. Mit beiden Varianten konnten Targets und Haltestrukturen hergestellt werden. Beim Lösen der Targets aus *AZ125nXt*-Photolack von der Substratoberfläche durch Wegätzen der Opferschicht aus Aluminium kam es allerdings zu erhöhten Spannungen und damit teilweise zum Zerbrechen der Haltestruktur. Dieses Problem konnte bei den Proben aus *SU-8* Lack durch Anwendung eines alternativen Ablöseverfahrens verhindert werden. Durch Benetzen der Proben mit Aceton wurden Struktur und Substrat getrennt. Diese Methode eignet sich aufgrund der chemischen Stabilität jedoch nicht für den Photolack aus der AZ-Familie.

Ein Target, das im Rahmen dieser Arbeit entstanden ist, wurde im Frühjahr 2018 während eines Experimentes zur Laser-Ionen-Beschleunigung verwendet. Die hemispherischen Targets mit innenliegender, sinusförmiger Modulation wurden entsprechend der entwickelten Prozesskette gefertigt. Die konkave Form und die Modulation auf der dem Laser abgewandten Seite des Targets erlaubt die Manipulation der Dichteverteilung der beschleunigten Teilchen und damit die experimentelle Untersuchung ballistischer Fokussierung. Durch das Experiment konnte nachgewiesen werden, dass die, auf Basis dieser Arbeit, hergestellten Targets für die Teilchenbeschleunigung nutzbar sind. Bisher ist es allerdings nicht gelungen, die Rückseitenmodulation bei der Detektion des Teilchenstroms abzubilden. In Folge dessen kann hier noch keine Aussage über das Fokussierungsverhalten getroffen werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Software *2PP-Utility* zur Steuerung des Aufbaus ermöglicht eine vollständige Fertigung von kleinsten, dreidimensionalen Freiformen. Dennoch gibt es strukturelle Aspekte, deren Umsetzung die Effizienz der Targetproduktion steigern können.

Aktuell wird das 3D-Modell in gleichförmige Voxel, die einer vorgegebenen Voxelgröße entsprechen, zerlegt. Bei der Auflösung findet keine Unterscheidung der drei Raumrichtungen statt, das heißt sie ist

---

in allen Dimensionen gleich groß. Durch eine detailliertere Differenzierung der Voxelgröße sowie der Belichtungsgeschwindigkeit wäre es allerdings möglich, unterschiedliche Auflösungen innerhalb einer Struktur zu verwenden. So könnten ebene Flächen oder das Innere einer Struktur weniger gut aufgelöst belichtet werden, während experimentell wichtige Mikromodulationen fein umgesetzt werden könnten, um so eine Effizienzsteigerung herbeizuführen.

Eine weitere Ausbaustufe der Software ist eine intelligente Geometrieerkennung, welche die Voxelisierung optimiert. Statt wie bisher lediglich waagerechte Linien abzuarbeiten, könnten damit zum Beispiel runde Geometrien innerhalb einer Schnittebene erkannt und entsprechend kreisförmig belichtet werden.

Neben der Erweiterung der Software, sind auch verschiedene Anpassungen des experimentellen Aufbaus der Zwei-Photonen-Polymerisation denkbar. So bringt bislang verwendete Schalteinheit, bestehend aus **EOM** und Polarisatoren, einige Erschwernisse mit sich, zu denen unter anderem die Schaltzeit und Dispersion zählen. Der Austausch dieser beider Komponenten durch einen **AOM** ist demzufolge empfehlenswert.

Ein weiteres großes Verbesserungspotential birgt die Variation der Geschwindigkeit, mit der eine Struktur erzeugt werden kann. Um die Bearbeitungszeit gering, gleichzeitig aber die Auflösung hoch zu halten, wird ein kleiner Fokus sowie eine hohe Geschwindigkeit mit hoher Präzision während des Abrasterns benötigt. Die maximale Geschwindigkeit und Beschleunigung der Motoren, die momentan verwendet werden, wird durch die große Masse des Systems begrenzt. Um die bewegte Masse zu reduzieren und damit während des Prozesses schneller fahren zu können, ist es denkbar, das Positioniersystem zu erweitern. Durch eine zusätzliche Piezo-getriebene Positionierplattform für die XY-Ebene könnte die Auflösung des Systems optimiert und die Belichtungszeit eines einzelnen Targets reduziert werden. Da kommerziell erhältliche Plattformen lediglich einen sehr begrenzten, wenige hundert Mikrometer weiten Fahrtweg zur Verfügung stellen, können damit nur einzelne Targets belichtet werden. Für die Positionierung der Probe an die Stelle des nächsten Targets könnten dabei weiterhin die aktuellen Motoren verwendet werden.

Statt wie bisher die Probe zu bewegen, wäre es zudem auch möglich, den Laserfokus zu bewegen. Schnell und präzise ist dies zum Beispiel mit galvanometrischen Spiegeln möglich. Auch hier ist eine Kombination mit den bereits existierenden Motoren denkbar.

Zurzeit wird der Laser mithilfe eines Mikroskop-Objektives fokussiert. Durch ein Linsenarray anstelle des Objektives könnten mehrere Fokusse in einem Raster erzeugt werden und so mehrere Targetstrukturen der gleichen Form zeitgleich belichtet werden. Es ist allerdings davon auszugehen, dass die Auflösung des Prozesses sinkt, da die Fokussierung der einzelnen Linsen weniger gut ist als die des momentan verwendeten Objektives.

Bezüglich der Probenzusammensetzung hat sich gezeigt, dass die beiden eingesetzten Photolacksorten unterschiedliche Vor- und Nachteile haben. Durch umfangreiche Tests einer Vielfalt an Photolacken kann ein für die jeweilige Anwendung möglichst optimaler Lack gefunden werden. So könnte sichergestellt werden, dass mit einer möglichst einfachen Prozesskette die Probe bei der UV-Kontaktbelichtung nicht an der Maske haften bleibt, die Zwei-Photonen-Polymerisation mit hoher Auflösung funktioniert und die fertigen Strukturen gut vom Substrat gelöst werden können. Dafür kommen sowohl kommerzielle als auch selbst zusammengestellte Lacke in Frage.

Ein Gütekriterium bei der Auswahl bzw. Entwicklung von Photolack ist die mit dem Lack erreichbare Dicke, da diese die Höhe der gefertigten Struktur limitiert. Mit einem Lack, welcher in der flüssigen Phase belichtet werden kann, ist es durch kontinuierliches Nachliefern von Lack möglich, eine uneingeschränkt hohe Struktur zu belichten. Die Kombination mit den UV-belichteten Haltestrukturen wäre damit allerdings nicht weiter funktional.

Zum Zeitpunkt dieser Arbeit werden die Proben entwickelt, indem sie in einem Bad aus Entwicklerflüssigkeit geschwenkt werden, bis die Strukturen bei Prüfung mit einem Lichtmikroskop vollständig



---

entwickelt scheinen. Aufgrund des großen Aspektverhältnisses innerhalb des inneren Rings der Haltestruktur, in dem sich das Target befindet, kann nicht immer gewährleistet werden, dass die Targetstruktur ausreichend mit Entwickler umspült wird. Alternative Entwicklungsverfahren zum bisherigen Tauchentwickeln, wie die Sprühentwicklung, sollten getestet werden. Erst wenn das Entwickeln feinsten Strukturen innerhalb der Prozesskette vollends verstanden und beherrscht wird, können Messungen, wie zum Beispiel die experimentelle Bestimmung der des Systems Auflösung, durchgeführt werden.

Nicht für alle Anwendungen ist eine makroskopische Haltestruktur wünschenswert. Bei der Belichtung und Entwicklung einer reinen Zwei-Photonen-Polymerisations-Struktur muss darauf geachtet werden, dass die kleine Struktur genügend Kontakt zum Substrat hat, um während der Entwicklung nicht verloren zu gehen. Um dies sicherzustellen, muss die Belichtung exakt auf Höhe des Übergangs zwischen Photolack und Substrat bzw. Opferschicht oder wenige Mikrometer im Substrat selbst starten. Die Detektion der Position dieser Grenzschicht hat sich im vorliegenden Aufbau als äußerst herausfordernd erwiesen. Versuche mit einer wenige Nanometer dick aufgesputterten Kupferschicht zwischen Glas und Lack, die eine Durchlichtmikroskopie im Aufbau weiterhin ermöglicht, verliefen vielversprechend. Auch hier soll angemerkt werden, dass eine Versuchsreihe zur Bestimmung des Übergangs nur dann sinnvoll durchgeführt werden kann, wenn die Entwicklung der Strukturen im Folgeschritt ausgereift ist.

Beim Ablösen der Strukturen zur Freistellung fanden im Rahmen dieser Arbeit zwei Varianten Anwendung. Zum einen wurde die Aluminium-Opferschicht unter dem *AZ125nXt*-Photolack mithilfe einer Aluminium-Ätze entfernt und zum anderen wurden *SU-8*-Lack-Strukturen mithilfe von Aceton abgelöst. Beim Ätzen des Aluminiums kam es vermehrt zu Spannungsbrüchen der Haltestrukturen. Um diese zu verhindern, sollte das Ätzverfahren insbesondere in Bezug auf die Temperatur überarbeitet werden. Über die Temperatur des Ätzmittels kann die Ätzrate und darüber hinaus die Blasenbildung beeinflusst werden, welche als Verursacher der Spannungsbrüche identifiziert werden konnte.

Die Targets, die durch Zwei-Photonen-Polymerisation produziert werden, bestehen gänzlich aus Polymer. Wie das in dieser Arbeit erwähnte Experiment zeigt, ist es möglich, mit einem solchen Target Laser-Ionen-Beschleunigung zu betreiben. Durch weitere Prozessschritte könnte ein solches Target jedoch auch in eine metallische Form überführt werden. Eine Erweiterung mit einem vergleichbar geringen Aufwand ist die Metallisierung der Rückseite des Targets. Zudem wäre auch ein anschließendes Entfernen des polymer-Rohlings, um ein reines Metall-Target zu erhalten, vorstellbar. Hierzu kommen sowohl nass-chemische Ätzverfahren als auch eine Plasmaveraschung in Frage. In beiden Fällen ist ein Abdecken der Haltestruktur, zum Beispiel durch eine Schicht Photolack, sinnvoll. Eine weitere Art der Metallisierung, die zudem eine Methode der Vervielfachung darstellt, ist die Verwendung von mithilfe der Zwei-Photonen-Polymerisation produzierten Geometrien als Stempel. Auf diese Weise ist es möglich, eine gut charakterisierte Geometrie zu multiplizieren und so mehrfach in Experimenten zu verwenden.



---

# Literaturverzeichnis

- [1] T. Maiman, “Stimulated Optical Radiation in Ruby,” Nature Publishing Group, vol. 187, p. 493, 1960.
- [2] F. J. McClung and H. R.W., “Characteristics of Giant Optical Pulsations from,” Proceedings of the IEEE, vol. 33, pp. 828–831, 1962.
- [3] L. E. Hargrove, R. L. Fork, and M. A. Pollack, “Locking of hene laser modes induced by synchronous intracavity modulation,” Applied Physics Letters, vol. 5, no. 1, pp. 4–5, 1964.
- [4] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses.,” Optics Communications, vol. 55, no. 6, pp. 447–449, 1985.
- [5] S. H. Batha, R. Aragonez, F. L. Archuleta, T. N. Archuleta, J. F. Benage, J. A. Cobble, J. S. Cowan, V. E. Fatherley, K. A. Flippo, D. C. Gautier, R. P. Gonzales, S. R. Greenfield, B. M. Hegelich, T. R. Hurry, R. P. Johnson, J. L. Kline, S. A. Letzring, E. N. Loomis, F. E. Lopez, S. N. Luo, D. S. Montgomery, J. A. Oertel, D. L. Paisley, S. M. Reid, P. G. Sanchez, A. Seifter, T. Shimada, and J. B. Workman, “TRIDENT high-energy-density facility experimental capabilities and diagnostics,” Review of Scientific Instruments, vol. 79, no. 10, pp. 1–3, 2008.
- [6] T. J. Yu, S. K. Lee, J. H. Sung, J. W. Yoon, T. M. Jeong, and J. Lee, “Pulses from chirped-pulse amplification Ti:sapphire laser,” Optics express, vol. 20, no. 10, pp. 25–32, 2012.
- [7] F. Wagner, C. P. João, J. Fils, T. Gottschall, J. Hein, J. Körner, J. Limpert, M. Roth, T. Stöhlker, and V. Bagnoud, “Temporal contrast control at the PHELIX petawatt laser facility by means of tunable sub-picosecond optical parametric amplification,” Applied Physics B: Lasers and Optics, vol. 116, no. 2, pp. 429–435, 2014.
- [8] T. Ebert, N. W. Neumann, T. Abel, G. Schaumann, and M. Roth, “Laser-induced microstructures on silicon for laser-driven acceleration experiments,” High Power Laser Science and Engineering, vol. 5, no. 13, pp. 1–6, 2017.
- [9] Z. Zhao, L. Cao, L. Cao, J. Wang, W. Huang, W. Jiang, Y. He, Y. Wu, B. Zhu, K. Dong, Y. Ding, B. Zhang, Y. Gu, M. Y. Yu, and X. T. He, “Acceleration and guiding of fast electrons by a nanobrush target,” Physics of Plasmas, vol. 17, no. 12, pp. 1–6, 2010.
- [10] D. Margarone, I. J. Kim, J. Psikal, J. Kaufman, T. Mocek, I. W. Choi, L. Stolcova, J. Proska, A. Choukourov, I. Melnichuk, O. Klimo, J. Limpouch, J. H. Sung, S. K. Lee, G. Korn, and T. M. Jeong, “Laser-driven high-energy proton beam with homogeneous spatial profile from a nanosphere target,” Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams, vol. 18, no. 7, pp. 1–7, 2015.
- [11] L. Giuffrida, K. Svensson, J. Psikal, M. Dalui, H. Ekerfelt, I. Gallardo Gonzalez, O. Lundh, A. Persson, P. Lutoslawski, V. Scuderi, J. Kaufman, T. Wiste, T. Lastovicka, A. Picciotto, A. Bagolini, M. Crivellari, P. Bellutti, G. Milluzzo, G. A. Cirrone, J. Magnusson, A. Gonoskov, G. Korn, C. G. Wahlström, and D. Margarone, “Manipulation of laser-accelerated proton beam profiles by nanostructured and microstructured targets,” Physical Review Accelerators and Beams, vol. 20, no. 8, pp. 1–8, 2017.

- 
- [12] H. Ruhl, T. Cowan, and J. Fuchs, "The generation of micro-fiducials in laser-accelerated proton flows, their imaging property of surface structures and application for the characterization of the flow," *Physics of Plasmas*, vol. 11, no. 5 PART 1, pp. 17–20, 2004.
- [13] M. Roth, P. Audebert, A. Blazevic, E. Brambrink, J. Cobble, T. E. Cowan, J. Fernandez, J. Fuchs, M. Geissel, M. Hegelich, S. Karsch, H. Ruhl, M. Schollmeier, and R. Stephens, "Laser accelerated heavy particles - Tailoring of ion beams on a nano-scale," *Optics Communications*, vol. 264, no. 2, pp. 519–524, 2006.
- [14] M. Schollmeier, K. Harres, F. Nürnberg, A. Blažević, P. Audebert, E. Brambrink, J. C. Fernández, K. A. Flippo, D. C. Gautier, M. Geißel, B. M. Hegelich, J. Schreiber, and M. Roth, "Laser beam-profile impression and target thickness impact on laser-accelerated protons," *Physics of Plasmas*, vol. 15, no. 5, pp. 1–12, 2008.
- [15] F. Nürnberg, M. Schollmeier, E. Brambrink, A. Blažević, D. C. Carroll, K. Flippo, D. C. Gautier, M. Geibel, K. Harres, B. M. Hegelich, O. Lundh, K. Markey, P. McKenna, D. Neely, J. Schreiber, and M. Roth, "Radiochromic film imaging spectroscopy of laser-accelerated proton beams," *Review of Scientific Instruments*, vol. 80, no. 3, 2009.
- [16] B. M. Hegelich, B. Albright, P. Audebert, A. Blazevic, E. Brambrink, J. Cobble, T. Cowan, J. Fuchs, J. C. Gauthier, C. Gautier, M. Geissel, D. Habs, R. Johnson, S. Karsch, A. Kemp, S. Letzring, M. Roth, U. Schramm, J. Schreiber, K. J. Witte, and J. C. Fernández, "Spectral properties of laser-accelerated mid-Z MeV/u ion beams," *Physics of Plasmas*, vol. 12, no. 5, pp. 1–5, 2005.
- [17] A. Tebartz, S. Bedacht, M. Hesse, S. Astbury, R. Clarke, A. Ortner, G. Schaumann, F. Wagner, D. Neely, and M. Roth, "Creation and characterization of free-standing cryogenic targets for laser-driven ion acceleration," *Review of Scientific Instruments*, vol. 88, no. 9, 2017.
- [18] K. A. Flippo, E. Humières, S. A. Gaillard, J. Rassuchine, D. C. Gautier, M. Schollmeier, F. Nürnberg, J. L. Kline, J. Adams, B. Albright, M. Bakeman, K. Harres, R. P. Johnson, G. Korgan, S. Letzring, S. Malekos, Y. Sentoku, T. Shimada, M. Roth, T. E. Cowan, J. C. Fernández, B. M. Hegelich, K. A. Flippo, E. Humières, S. A. Gaillard, J. Rassuchine, and D. C. Gautier, "Increased efficiency of short-pulse laser-generated proton beams from novel flat-top cone targets Increased efficiency of short-pulse laser-generated proton beams from novel flat-top cone targets a . . .," *Physics of Plasmas*, 2008.
- [19] M. Göppert-Mayer, "Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen," *Annalen der Physik*, vol. 401, no. 3, pp. 273–294, 1931.
- [20] M. Emons, K. Obata, T. Binhammer, A. Ovsianikov, B. N. Chichkov, and U. Morgner, "Two-photon polymerization technique with sub-50 nm resolution by sub-10 fs laser pulses," *Optical Materials Express*, vol. 2, no. 7, p. 942, 2012.
- [21] S. Juodkazis, V. Mizeikis, K. K. Seet, M. Miwa, and H. Misawa, "Two-photon lithography of nano-rods in SU-8 photoresist," *Nanotechnology*, vol. 16, no. 6, pp. 846–849, 2005.
- [22] Z. Gan, Y. Cao, R. A. Evans, and M. Gu, "Three-dimensional deep sub-diffraction optical beam lithography with 9 nm feature size," *Nature Communications*, vol. 4, no. May, pp. 1–7, 2013.
- [23] L. J. Jiang, J. H. Campbell, Y. F. Lu, T. Bernat, and N. Petta, "Direct writing target structures by two-photon polymerization," in *Fusion Science and Technology*, vol. 70, pp. 295–309, 2016.
- [24] A. Piel, *Plasma Physics. An Introduction to Laboratory, Space, and Fusion Plasmas*. Kiel: Springer International Publishing AG 2017, second edi ed., 2010.

- 
- [25] P. Mulser and D. Bauer, High Power Laser-Matter Interaction, vol. 238. Springer Tracts in Modern Physics, 2010.
- [26] F. Chen, Introduction to Plasma Physics and Controlled Fusion. Los Angeles: Springer International Publishing Switzerland AG, third edit ed., 2016.
- [27] S. Eliezer, “The Interaction of High-Power Lasers with Plasmas,” in Series in Plasma Physics, p. 335, IOP Publishing Ltd 2002, 2002.
- [28] F. Brunel, “Not-so-resonant, resonant absorption,” Physical Review Letters, vol. 59, no. 1, pp. 52–55, 1987.
- [29] A. Tebartz, Kryogene Wasserstoff- und Deuteriumtargets zur Laserionenbeschleunigung. PhD thesis, TU Darmstadt, 2018.
- [30] T. M. Jeong and J. Lee, “Generation of High-Intensity Laser Pulses and their Applications,” in High Energy and Short Pulse Lasers (R. Viskup, ed.), ch. 1, p. 424, INTECH, 2016.
- [31] W. L. Kruer and K. Estabrook, “ $J \times B$  heating by very intense laser light,” American Institute of Physics, 1985.
- [32] E. L. Clark, M. Zepf, F. N. Beg, M. Tatarakis, C. Escoda, M. Norrefeldt, A. E. Dangor, K. Krushelnick, R. J. Clarke, P. A. Norreys, C. L. Facility, and C. Rutherford, “Energetic proton generation and plasma jet formation from ultra-intense laser- plasma interactions with solids,” Physical Review Letters, vol. 85, no. 8, pp. 30–33, 2000.
- [33] A. Maksimchuk, S. Gu, K. Flippo, D. Umstadter, and A. Y. Bychenkov, “Forward ion acceleration in thin films driven by a high-intensity laser,” Physical Review Letters, vol. 84, no. 18, pp. 4108–4111, 2000.
- [34] R. A. Snavely, M. H. Key, S. P. Hatchett, I. E. Cowan, M. Roth, T. W. Phillips, M. A. Stoyer, E. A. Henry, T. C. Sangster, M. S. Singh, S. C. Wilks, A. MacKinnon, A. Offenberger, D. M. Pennington, K. Yasuike, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, J. Johnson, M. D. Perry, and E. M. Campbell, “Intense high-energy proton beams from petawatt-laser irradiation of solids,” Physical Review Letters, vol. 85, no. 14, pp. 2945–2948, 2000.
- [35] S. P. Hatchett, C. G. Brown, T. E. Cowan, E. a. Henry, J. S. Johnson, M. H. Key, J. a. Koch, a. B. Langdon, B. F. Lasinski, R. W. Lee, A. J. Mackinnon, D. M. Pennington, M. D. Perry, T. W. Phillips, M. Roth, T. C. Sangster, M. S. Singh, R. a. Snavely, M. a. Stoyer, S. C. Wilks, and K. Yasuike, “Electron, photon and ion beams from the relativistic interaction of Petawatt laser pulses with solid targets,” Physics of Plasmas, vol. 7, no. 5, p. 2076, 2000.
- [36] M. S. Schollmeier, Optimization and control of laser-accelerated proton beams. Dr. rer. nat., TU Darmstadt, 2008.
- [37] C. Perego, A. Zani, D. Batani, and M. Passoni, “Extensive comparison among Target Normal Sheath Acceleration theoretical models,” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 653, no. 1, pp. 89–93, 2011.
- [38] M. Passoni, V. T. Tikhonchuk, M. Lontano, and V. Y. Bychenkov, “Charge separation effects in solid targets and ion acceleration with a two-temperature electron distribution,” Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics, vol. 69, no. 2 2, pp. 1–11, 2004.
- [39] P. Mora, “Plasma Expansion into a Vacuum,” Physical Review Letters, vol. 90, no. 18, p. 4, 2003.
-

- 
- [40] H. Daido, M. Nishiuchi, and A. S. Pirozhkov, "Review of laser-driven ion sources and their applications," Reports on Progress in Physics, vol. 75, no. 5, p. 72, 2012.
- [41] L. Štolcová, J. Proška, F. Novotný, M. Procházka, and I. Richter, "Periodic arrays of metal nanobowls as substrates for SERS," Langmuir, vol. 25, no. 19, pp. 11216–11216, 2009.
- [42] M. Roth, "Laser accelerated ions in ICF research prospects and experiments," PLASMA PHYSICS AND CONTROLLED FUSION, vol. 47, 2005.
- [43] O. Klimo, J. Psikal, J. Limpouch, J. Proška, F. Novotny, T. Ceccotti, V. Floquet, and S. Kawata, "Short pulse laser interaction with micro-structured targets: Simulations of laser absorption and ion acceleration," New Journal of Physics, vol. 13, 2011.
- [44] L. Cao, Y. Gu, Z. Zhao, L. Cao, W. Huang, W. Zhou, X. T. He, W. Yu, and M. Y. Yu, "Enhanced absorption of intense short-pulse laser light by subwavelength nanolayered target," Physics of Plasmas, vol. 17, no. 4, 2010.
- [45] A. Andreev, N. Kumar, K. Platonov, and A. Pukhov, "Efficient generation of fast ions from surface modulated nanostructure targets irradiated by high intensity short-pulse lasers," Physics of Plasmas, vol. 18, no. 10, pp. 1–5, 2011.
- [46] M. Schollmeier, M. Roth, A. Blazevic, E. Brambrink, J. A. Cobble, J. C. Fernandez, K. A. Flippo, D. C. Gautier, D. Habs, K. Harres, B. M. Hegelich, T. Heßling, D. H. H. Hoffmann, S. Letzring, F. Nürnberg, G. Schaumann, J. Schreiber, and K. Witte, "Laser ion acceleration with micro-grooved targets," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 577, no. 1-2, pp. 186–190, 2007.
- [47] T. H. Her, R. J. Finlay, C. Wu, S. Deliwala, and E. Mazur, "Microstructuring of silicon with femto-second laser pulses," Applied Physics Letters, vol. 73, no. 12, pp. 1673–1675, 1998.
- [48] M. Dalui, W. Wang, T. M. Trivikram, S. Sarkar, and S. Tata, "Preferential enhancement of laser-driven carbon ion acceleration from optimized nanostructured surfaces," Scientific Reports, no. January, pp. 1–12, 2015.
- [49] D. Margarone, O. Klimo, I. J. Kim, J. Prokūpek, J. Limpouch, T. M. Jeong, T. Mocek, J. Pkal, H. T. Kim, J. Proka, K. H. Nam, L. Tolcová, I. W. Choi, S. K. Lee, J. H. Sung, T. J. Yu, and G. Korn, "Laser-driven proton acceleration enhancement by nanostructured foils," Physical Review Letters, vol. 109, no. 23, pp. 1–5, 2012.
- [50] H. Habara, S. Honda, M. Katayama, H. Sakagami, K. Nagai, and K. A. Tanaka, "Efficient energy absorption of intense ps-laser pulse into nanowire target," Physics of Plasmas, vol. 23, no. 6, pp. 1–5, 2016.
- [51] P. Gibbon and O. N. Rosmej, "Plasma Physics and Controlled Fusion Stability of nanostructure targets irradiated by high intensity laser pulses Stability of nanostructure targets irradiated by high intensity laser pulses," Plasma Physics and Controlled Fusion, vol. 49, pp. 1873–1883, 2007.
- [52] M. Dalui, M. Kundu, T. M. Trivikram, R. Rajeev, K. Ray, and M. Krishnamurthy, "Bacterial cells enhance laser driven ion acceleration," Scientific Reports, pp. 1–5, 2014.
- [53] E. Brinksmeier, R. Gläbe, and L. Schönemann, "Review on diamond-machining processes for the generation of functional surface structures," CIRP Journal of Manufacturing Science and Technology, vol. 5, no. 1, pp. 1–7, 2012.

- 
- [54] F. Wagner, S. Bedacht, V. Bagnoud, O. Deppert, S. Geschwind, R. Jaeger, D. H. H. Hoffmann, and M. Roth, "Simultaneous observation of angularly separated laser-driven proton beams accelerated via two different mechanisms," *Physics of Plasmas*, vol. 22, 2015.
- [55] S. Kar, K. Markey, M. Borghesi, D. C. Carroll, P. McKenna, D. Neely, M. N. Quinn, and M. Zepf, "Ballistic Focusing of Polyenergetic Protons Driven by Petawatt Laser Pulses," *Physical Review Letters*, vol. 106, pp. 1–4, 2011.
- [56] R. A. Snavely, B. Zhang, K. Akli, Z. Chen, R. R. Freeman, P. Gu, S. P. Hatchett, D. Hey, J. Hill, M. H. Key, Y. Izawa, J. King, Y. Kitagawa, R. Kodama, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, A. Lei, A. J. MacKinnon, P. Patel, R. Stephens, M. Tampo, K. A. Tanaka, R. Town, Y. Toyama, T. Tsutsumi, S. C. Wilks, T. Yabuuchi, and J. Zheng, "Laser generated proton beam focusing and high temperature isochoric heating of solid matter," *Physics of Plasmas*, vol. 14, no. 9, pp. 1–5, 2007.
- [57] T. Bartal, M. E. Foord, C. Bellei, M. H. Key, K. a. Flippo, S. a. Gaillard, D. T. Offermann, P. K. Patel, L. C. Jarrott, D. P. Higginson, M. Roth, A. Otten, D. Kraus, R. B. Stephens, H. S. McLean, E. M. Giraldez, M. S. Wei, D. C. Gautier, and F. N. Beg, "Focusing of short-pulse high-intensity laser-accelerated proton beams," *Nature Physics*, vol. 8, pp. 139–142, dec 2011.
- [58] S. C. Wilks, A. B. Langdon, T. E. Cowan, M. Roth, M. Singh, S. Hatchett, M. H. Key, D. Pennington, A. MacKinnon, and R. A. Snavely, "Energetic proton generation in ultra-intense laser-solid interactions," *Physics of Plasmas*, vol. 8, no. 2, pp. 542–549, 2001.
- [59] D. T. Offermann, K. A. Flippo, J. Cobble, M. J. Schmitt, S. A. Gaillard, T. Bartal, D. V. Rose, D. R. Welch, M. Geissel, and M. Schollmeier, "Characterization and focusing of light ion beams generated by ultra intensely irradiated thin foils at the kilojoule scale," *Physics of Plasmas*, vol. 18, no. 5, 2011.
- [60] B. Qiao, M. E. Foord, M. S. Wei, R. B. Stephens, M. H. Key, H. Mclean, P. K. Patel, and F. N. Beg, "Dynamics of high-energy proton beam acceleration and focusing from hemisphere-cone targets by high-intensity lasers," *Physical Review E*, vol. 013108, pp. 1–8, 2013.
- [61] M. E. Foord, T. Bartal, C. Bellei, M. Key, K. Flippo, R. B. Stephens, P. K. Patel, H. S. McLean, L. C. Jarrott, M. S. Wei, and F. N. Beg, "Proton trajectories and electric fields in a laser-accelerated focused proton beam," *Physics of Plasmas*, vol. 19, no. 5, 2012.
- [62] T. Kluge, W. Enghardt, S. D. Kraft, U. Schramm, K. Zeil, T. E. Cowan, and M. Bussmann, "Enhanced laser ion acceleration from mass-limited foils," *Physics of Plasmas*, vol. 17, no. 12, pp. 1–7, 2010.
- [63] A. A. Andreev, R. Sonobe, S. Kawata, S. Miyazaki, K. Sakai, K. Miyauchi, T. Kikuchi, K. Platonov, and K. Nemoto, "Effect of a laser prepulse on fast ion generation in the interaction of ultra-short intense laser pulses with a limited-mass foil target," *Plasma Physics and Controlled Fusion*, vol. 48, no. 11, pp. 1605–1619, 2006.
- [64] S. A. Gaillard, T. Kluge, K. A. Flippo, M. Bussmann, B. Gall, T. Lockard, M. Geissel, D. T. Offermann, M. Schollmeier, Y. Sentoku, and T. E. Cowan, "Increased laser-accelerated proton energies via direct laser-light-pressure acceleration of electrons in microcone targets," *Physics of Plasmas*, vol. 18, no. 5, pp. 1–11, 2011.
- [65] J. Psikal, V. T. Tikhonchuk, J. Limpouch, A. A. Andreev, and A. V. Brantov, "Ion acceleration by femtosecond laser pulses in small multispecies targets," *Physics of Plasmas*, vol. 15, no. 5, pp. 1–8, 2008.



- 
- [66] A. Henig, D. Kiefer, M. Geissler, S. G. Rykovanov, R. Ramis, R. Hörlein, J. Osterhoff, Z. Major, L. Veisz, S. Karsch, F. Krausz, D. Habs, and J. Schreiber, “Laser-driven shock acceleration of ion beams from spherical mass-limited targets,” Physical Review Letters, vol. 102, no. 9, pp. 100–103, 2009.
- [67] T. M. Ostermayr, J. Gebhard, D. Haffa, D. Kiefer, C. Kreuzer, K. Allinger, C. Bömer, J. Braenzel, M. Schnürer, I. Cermak, J. Schreiber, and P. Hilz, “A transportable Paul-trap for levitation and accurate positioning of micron-scale particles in vacuum for laser-plasma experiments,” Review of Scientific Instruments, vol. 89, no. 1, pp. 1–10, 2018.
- [68] W. Demtröder, Experimentalphysik 2. Springer Spektrum, 6 ed., 2013.
- [69] R. W. Boyd, Nonlinear Optics. Academic Press, third edit ed., 2008.
- [70] W. Nolting, Grundkurs Theoretische Physik 3 Elektrodynamik. Springer Berlin Heidelberg, 2011.
- [71] D. Meschede, Optik, Licht und Laser. Teubner Studienbücher Physik, Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 3rd ed., 2008.
- [72] M. Wollenhaupt, A. Assion, and T. Baumert, “Femtosecond Laser Pulses: Linear Properties, Manipulation, Generation and Measurement,” in Springer Handbook of Lasers and Optics, pp. 937–983, Springer Science+Business Media, LLC New York, 1 ed., 2007.
- [73] C. Rullière, Femtosecond laser pulses : principles and experiments. New York: Springer-Verlag, 2nd ed., 2005.
- [74] H. A. Haus, J. G. Fujimoto, and E. P. Ippen, “Structures for additive pulse mode locking,” J. Opt. Soc. Am. B., vol. 8, no. 10, pp. 2068–2076, 1991.
- [75] D. M. Windisch, “Herstellung von Mikrotargets für die laserinduzierte Ionenbeschleunigung,” dipl, TU Darmstadt, 2013.
- [76] F. Träger, Springer handbook of lasers and optics. Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2012, träger ed., 2012.
- [77] C. Iaconis and I. A. Walmsley, “Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses,” Optics Letters, vol. 23, no. 10, p. 792, 1998.
- [78] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. A. Richman, and D. J. Kane, “Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating,” Review of Scientific Instruments, vol. 68, no. 9, pp. 3277–3295, 1997.
- [79] W. Kaiser and C. G. B. Garrett, “Two-Photon Excitation in  $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2++}$ ,” Physical Review Letters, vol. 7, no. 6, pp. 229—231, 1961.
- [80] K.-s. Lee, D.-y. Yang, S. H. Park, and R. H. Kim, “Review Recent developments in the use of two-photon polymerization in precise 2D and 3D microfabrications,” Wiley InterScience, no. January, pp. 72–82, 2006.
- [81] S. Francisco and A. Ca, Advances in Polymer Science,. Springer-Verlag Berlin Heidelberg c This, 2006.
- [82] W. Bischel and P. Kelly, “High-Resolution Doppler-Free Two-Photon Spectroscopic Studies of Molecules,” Physical Review A, vol. 13, p. 12, 1976.



- 
- [83] W. G. Fisher, W. P. Partridge, C. Dees, and E. A. Wachter, "Simultaneous Two-Photon Activation of Type-I Photodynamic Therapy Agents," Photochemistry and Photobiology, vol. 66, no. 2, pp. 141–155, 1997.
- [84] Sanna Turunen (Tampere University of Technology), "Direct Laser Writing of Proteins and Synthetic Photoresists for Neuronal Cell Growth Guidance," phd, Tampere University of Technology, 2017.
- [85] K. S. Lee, R. H. Kim, D. Y. Yang, and S. H. Park, "Advances in 3D nano/microfabrication using two-photon initiated polymerization," Progress in Polymer Science (Oxford), vol. 33, no. 6, pp. 631–681, 2008.
- [86] J. Serbin, A. Egbert, A. Ostendorf, B. N. Chichkov, R. Houbertz, G. Domann, J. Schulz, C. Cronauer, L. Fröhlich, and M. Popall, "Femtosecond laser-induced two-photon polymerization of inorganic-organic hybrid materials for applications in photonics," Optics letters, vol. 28, pp. 301–3, mar 2003.
- [87] MicroChemicals, "Aufschleudern von Fotolack." [www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html](http://www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html), 2013.
- [88] MicroChemicals, "Belackungsverfahren für Fotolacke." [www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html](http://www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html), 2013.
- [89] MicroChemicals GmbH, "Softbake von Fotolackschichten." [www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html](http://www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html), 2013.
- [90] C. A. Mack, Fundamental Principles of Optical Lithography. Wiley, 2008.
- [91] MicroChemicals, "Grauton-Lithografie mit Fotolacken." [www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html](http://www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html), 2013.
- [92] A. Rammohan, P. K. Dwivedi, R. Martinez-Duarte, H. Katepalli, M. J. Madou, and A. Sharma, "One-step maskless grayscale lithography for the fabrication of 3-dimensional structures in SU-8," Sensors and Actuators, B: Chemical, vol. 153, no. 1, pp. 125–134, 2011.
- [93] MicroChemicals GmbH, "Belichten von Fotolack." [www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html](http://www.microchemicals.com/de/downloads/anwendungshinweise.html), 2013.
- [94] W. Kaiser, Kunststoffchemie für Ingenieure. HANSER, 4 ed., 2016.
- [95] G. Odian, Principles of Polymerization. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc., 4 ed., 2004.
- [96] A. Del Campo and C. Greiner, "SU-8: A photoresist for high-aspect-ratio and 3D submicron lithography," Journal of Micromechanics and Microengineering, vol. 17, no. 6, 2007.
- [97] T. Buch, "Aufbau eines Autokorrektors zur Messung von Laserpuls dauern im Femtosekundenbereich," bsc-thesis, TU Darmstadt, 2013.
- [98] Pedrotti, Bausch, and Schmidt, Optik für Ingenieure. Berlin/Heidelberg: Springer-Verlag, 2005.
- [99] H. Eichler and J. Eichler, Laser: bauformen, strahlführung, anwendungen. Springer, 6. auflage ed., 2010.
- [100] D. Meagher, "Geometric Modeling Using Octree Encoding," Computer Graphics and Image Processing, vol. 19, pp. 129–147, 1982.

- 
- [101] W. Krüger, “Konstruktion und Herstellung von Haltestrukturen für mikrostrukturierte Freiform Targets mittels Lithographie,” bsc-thesis, TU Darmstadt, 2018.
- [102] Merck, “technical datasheet AZ 125nXT Series.” 2016.
- [103] T. D. Arber, K. Bennett, C. S. Brady, A. Lawrence-Douglas, M. G. Ramsay, N. J. Sircombe, P. Gillies, R. G. Evans, H. Schmitz, A. R. Bell, and C. P. Ridgers, “Contemporary particle-in-cell approach to laser-plasma modelling,” *Plasma Physics and Controlled Fusion*, vol. 57, no. 11, p. 113001, 2015.
- [104] C. Nakic, J. Bieker, D. Lämmle, T. Winterstein, H. F. Schlaak, G. Schaumann, and T. Abel, “Development of an electrothermal micro positioning platform for laser targets with two degrees of freedom,” *2016 International Conference on Manipulation, Automation and Robotics at Small Scales, MARSS 2016*, 2016.

---

# Abkürzungsverzeichnis

AOM	akusto-optischer Modulator
APM	engl. <i>additive-pulse mode locking</i>
BBO-Kristall	beta barium Borat Kristall
Brep	engl. <i>boundary representation</i>
CAD	engl. <i>computer-aided-design</i>
CW-Laser	engl. <i>continuous wave</i>
DFG	engl. <i>difference frequency generation</i>
DPSS-Laser	engl. <i>diode pumped solid state-Laser</i>
EMK	Institut für Elektromechanische Konstruktionen, TU Darmstadt
EOM	Elektro-optischer Modulator
FiF	Förderinitiative Interdisziplinäre Forschung der TU Darmstadt
FWHM	engl. <i>full width at half maximum</i>
GDD	Gruppenverzögerungs-Dispersion
GSI	Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung in Darmstadt
GM	Göppert-Mayer
GVD	Gruppen-Geschwindigkeits-Dispersion
JUMP	Hochintegrierte aktiv justierbare Lasertargets zur Untersuchung von Materie im Plasmazustand
NA	Numerische Apertur
PEB	engl. <i>post-exposure-bake</i>
PHELIX	Petawatt Hochenergie Laser für Schwerionenexperimente
PIC	engl. <i>particle-in-cell</i>
RCF	engl. <i>radiochromic film</i>
SHG	engl. <i>second harmonic generation</i>
SFG	engl. <i>sum frequency generation</i>
STL	Stereolithographie
SVEA	engl. <i>slowly varying envelope approximation</i>
THG	engl. <i>third harmonic generation</i>
TNSA	engl. <i>target normal sheath acceleration</i>
TTL	Transistor-Transistor-Logik
Voxel	Volumen-Pixel



---

# Publikationen und Konferenzen

---

## Publikationen

---

**T. Abel**, R. Dörr, W. Krüger, R. Horstmann, G. Schaumann, M. Roth and H. F. Schlaak  
*Combining two-photon-polymerization with UV-lithography for laser particle acceleration targets*  
Journal of Physics Conference Series ‘The proceedings of the 6th Target Fabrication Workshop (TFW6) and the Targetry for High Repetition Rate Laser-Driven Sources (Targ3) Conference’, submitted, 2018

T. Ebert, N. W. Neumann, **T. Abel**, G. Schaumann, and M. Roth  
*Laser-induced microstructures on silicon for laser-driven acceleration experiments*  
High Power Laser Science and Engineering, (2017), Vol. 5, e13, 6 pages doi:10.1017/hpl.2017.13

C. Nakic, J. Bieker, D. Lämmle, T. Winterstein, H. F. Schlaak, G. Schaumann and **T. Abel**  
*Development of an electrothermal micro positioning platform for laser targets with two degrees of freedom*  
Conference: 2016 International Conference on Manipulation, Automation and Robotics at Small Scales (MARSS)

---

## Konferenzbeiträge

---

- |         |   |
|---------|---|
| 05/2017 | Target Fabrication Workshop<br>Greenwich, UK<br><b>Vortrag</b> <i>Target Fabrication with Two-Photon-Polymerisation</i>   |
| 07/2014 | Target Fabrication Workshop<br>St. Andrews, UK<br><b>Vortrag</b> <i>Target Fabrication with Two-Photon-Polymerisation</i>   |
| 01/2014 | 34rd International Workshop on Physics of High Energy Density in Matter<br>Hirschegg, Österreich<br><b>Vortrag</b> <i>Target Fabrication with Two-Photon-Polymerisation</i> |



---

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken die mich auf meinem bisherigen Weg unterstützt und begleitet haben. Mein besonderer Dank gilt:

*Markus Roth*, vielen Dank, dass du mir die Möglichkeit zu dieser Arbeit gegeben hast.

*Thomas Walther*, vielen Dank dafür, dass Sie sich bereit erklärt haben, meine Arbeit als Zweitgutachter zu bewerten.

*Gabriel Schaumann*, ich danke dir ganz herzlich für die Zeit, die ich in deinem Labor verbringen durfte. In den Jahren der gemeinsamen Arbeit im Labor hat mir deine Unterstützung durch gemeinsames Fachsimpeln, nette Unterhaltungen und positiven Zuspruch oft sehr weitergeholfen. Trotz deiner Arbeit als Laborleiter des Detektor und Targetlabors und Organisator der Arbeitsgruppe, hast du dir immer die Zeit für einen gemeinsamen Kaffee genommen. Du hast auch maßgeblich dazu beigetragen, dass ich nie den Mut und die Zuversicht verliere. Dafür danke ich dir.

*Denis Marc Windisch*, deine Diplomarbeit hat sozusagen den Grundstein für meine Dissertation gelegt. Aber nicht nur dafür möchte ich dir Danken. Du standest mir auch nach der Beendigung deiner Arbeit mit Rat und Tat zur Seite. Dabei habe ich dich nicht nur als Softwareentwickler sondern auch als Mensch und Arbeitskollegen zu schätzen gelernt.

*Wilhelm Krüger* und *Robin Lorenz*, danke für die nette Gesellschaft und die tolle Zusammenarbeit.

*Dem Experiment-Team*, ich danke allen die am Experiment im Frühjahr 2018, bei dem ich experimentelle Daten sammeln konnte, beteiligt waren. Besonders danke ich hierbei *Annika Kleinschmidt*, *Johannes Hornung* für die Unterstützung beim Experiment und bei der Simulation, sowie *Vincent Bagnoud* und dem gesamten PHELIX-Team.

*Nico W. Neumann*, du warst meine Verstärkung in Sachen nichtlinearer Optik. Aber auch Büro-Mitbewohner, 3D-Drucker Sachverständiger, Laser-Mitbenutzer, Kaffee-Trinker, Vereinskollege und vieles mehr. Für all die Tätigkeiten, Ratschläge und gemeinsame Zeit möchte ich dir Danken.

*Den alten Hasen*, damit meine ich all die Doktoranden und Mitglieder der Arbeitsgruppe, die mich so herzlich in ihrer Mitte aufgenommen haben. Als ich damals zur Laser- und Plasmaphysik kam, hatte ich viel Neues zu lernen (sogar noch mehr als jetzt noch). Von den erfahreneren Mitstreitern auf dem Weg zur Doktorarbeit habe ich sehr profitiert, fachlich, wie auch menschlich. Mein Dank geht an *Olli Deppert*, *Alex Ortner*, *Simon Busold*, *Florian Wagner*, *Jan Helfrich*, *Michael Endres* und all die anderen.

*Robert Jäger*, ich danke dir sehr für die gemeinsame Arbeitszeit im Labor. Dabei denke ich vor allem an die vielen aufheiternden Momente und die etlichen Gelegenheiten bei denen es hieß „Keine Ahnung wie das chemisch funktioniert, frag mal Robert, der weis das!“. Du warst unser aller Joker in Sachen Chemie und Plasma und auch stets bereit, Licht in unser Dunkel zu bringen. Du warst eine echte Bereicherung für meine Laborarbeit.

*Alexandra Tebartz*, danke für deine nette Gesellschaft und deine geduldige Hilfe bei meinen Streitigkeiten mit Syntax, Orthographie und LaTeX.

*Tina Ebert*, *Markus Hesse* und *Steffen Sander*, ihr seid die neue Generation Doktoranden im Targetlabor, aber, was die Laser- und Plasmaphysik angeht, auch schon lange im Geschäft. Ich danke euch für eure vielfältige Unterstützung, die gute Zusammenarbeit und die angenehme Zeit, die wir gemeinsam verbringen konnten. Ich danke dir, Markus, für die Unterstützung an der Computer-Front. Tina, auch dir



---

möchte ich auf diesem Wege noch einmal ganz herzlich für deine Unterstützung danken. Vielen Dank dass du die Simulation für mich angefertigt hast und meine Arbeit gelesen hast. Es hat mir immer Spaß gemacht mit dir zusammen zu arbeiten.

*Stefan Bedacht*, du, als bekennender Freund von LaTeX, Schrift-Satz, Laufweite, Grauwerten, Rechtschreibung und Co. hast mich oft in diesen Dingen unterstützt. Durch unsere gemeinsame Zeit bei der Graduiertenschule, bei Kinoabenden und Stammtischbesuchen ist aus der anfangs guten, kollegialen Beziehung eine Freundschaft gewachsen. Ich danke dir für diese Zeit.

*Chrissi, Marc und Jogi*, seit wir gemeinsam mit dem Physik Studium begonnen haben, sind mehr als 10 Jahre ins Land gegangen. Obwohl wir zwischenzeitlich in unterschiedlichen Instituten, Universitäten und Ländern geforscht, gearbeitet und gelebt haben, haben wir uns doch nie aus den Augen verloren. Ich bin froh, gleich zu Beginn meines Studiums Menschen getroffen zu haben, mit denen ich den langen Weg bis zur Promotion gehen konnte. Unsere Freundschaft hat mein Leben bereichert, fachlich wie auch menschlich und der Erfolg unserer kleinen Lerngruppe spricht für sich!

*GSC ESE*, zu Beginn meiner Promotion wurde ich Mitglied der *Darmstadt Graduate School of Excellence Energy Science and Engineering*. Die Zeit in dieser interdisziplinären Gemeinschaft hat mir stets viel Freude bereitet und meinen Horizont erweitert. Neben vielen Bekanntschaften aus diesem Kreis haben sich auch Freundschaften entwickelt, die ich nicht missen möchte. *Benjamin, Moritz, Natalia, Thomas, Stefan, Yulia*, es war schön mit Gleichgesinnten den „Leidensweg“ zur Promotion gehen zu können. Ich hoffe sehr, dass wir uns auch nach diesem Lebensabschnitt nicht aus den Augen verlieren werden.

*Meinen Eltern*, ohne euch wäre diese Arbeit nie möglich gewesen. Ihr habt mich immer unterstützt, mir Mut gemacht und dafür Sorge getragen, dass ich mein Potential voll ausschöpfen kann. Ich kann euch für euren Einsatz und eure Unterstützung nicht genug Danken!

*Inga und Henry*, ihr seid der Mittelpunkt und Ruhepol in meinem Leben. Ich danke dir, Inga, dass ich mich in allen Lagen auf dich verlassen kann, du mich unterstützt, mich aufmunterst, mir Mut machst, mich aufbaust, nie den Glauben an mich verlierst und mir den Rücken freihältst. Dass du einfach für mich da bist, bedeutet mir viel und hilft mir sehr. Henry, bei dir möchte ich mich bedanken, dass du mich aufmunterst, von der Arbeit ablenkst und mich erdest.

This work was financial support by the DFG in the framework of the Excellence Initiative, Darmstadt Graduate School of Excellence Energy Science and Engineering (GSC 1070).

---

# Lebenslauf

---

## Persönliche Daten

---

Name: Torsten Abel  
Geburtsdatum: 08.04.1988  
Geburtsort: Ottweiler  
Familienstand: verheiratet  
Staatsangehörigkeit: deutsch

---

## Schule und Studium

---

04/2011 – 02/2013 **Technische Universität Darmstadt**  
Masterstudium Physik, Schwerpunkt „Moderne Optik“  
Masterarbeit „Lokalisierte Lichtspeicherung in einem seltenerd-dotierten Festkörper“

10/2007 – 03/2011 **Technische Universität Darmstadt**  
Bachelorstudium Physik  
Bachelorarbeit „Aufbau, Charakterisierung und Stabilisierung eines Halbleiterlasers mit externem Resonator“

08/1998 – 06/2007 **Gymnasium Ottweiler**  
Abitur

---

## Beruflicher Werdegang

---

04/2013 – 04/2016 Stipendiat der *Darmstadt Graduate School of Excellence*  
*Energy Science and Engineering*

seit 04/2016 Wissenschaftlicher Mitarbeiter an der TU Darmstadt

---

## Lehre

---

seit 2013 Betreuung von Bachelor- und Masterarbeiten

2013 – 2015 Vorlesungsassistent „Physik für Chemiker“  
Betreuung Grundpraktikum



---

# Erklärung zur Dissertation

Hiermit versichere ich, die vorliegende Dissertation ohne Hilfe Dritter nur mit den angegebenen Quellen und Hilfsmitteln angefertigt zu haben. Alle Stellen, die aus Quellen entnommen wurden, sind als solche kenntlich gemacht. Diese Arbeit hat in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen.

Darmstadt, den 15.05.2018

---

(Torsten Abel)

---